

УДК 532.62:621.891

КП

№ держреєстрації 0117U003927

Інв. №

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ

Сумський державний університет (СумДУ)

40007, м. Суми, вул. Р.-Корсакова, 2: тел. (0542) 33-41-08, факс (0542) 33-40-49

ЗАТВЕРДЖУЮ

Проректор з наукової роботи

д-р фіз.-мат. наук, проф.

\_\_\_\_\_ А.М. Черноус

ЗВІТ

ПРО НАУКОВО-ДОСЛІДНУ РОБОТУ

**Дослідження процесів формування багат шарових анізотропних  
нано-розмірних структур адсорбату при конденсації та  
епітаксіальному рості**

**ВСТАНОВЛЕННЯ УМОВ КОНТРОЛЮВАННЯ  
МОРФОЛОГІЄЮ ЗРОСТАЮЧОЇ ПОВЕРХНІ, ТИПОМ ТА  
РОЗМІРОМ ПОВЕРХНЕВИХ СТРУКТУР В СИСТЕМІ  
ПЛАЗМА-КОНДЕНСАТ**

(проміжний)

Начальник НДЧ

канд. фіз.-мат. наук, с.н.с

Керівний НДР

канд. фіз.-мат. наук

Д.І.Курбатов

А.В.Дворниченко

2018

Рукопис закінчено 24 грудня 2018 р.

Результати цієї роботи розглянуто на засіданні наукової ради СумДУ, протокол  
від 27.11.2018 № 5

## СПИСОК АВТОРІВ

Керівник НДР канд. фіз.-мат наук (24.12.2018)	А.В. Дворниченко (реферат, вступ, розд.1, висновки)
Відповідальний виконавець канд. фіз.-мат. наук, с.н.с. (24.12.2018)	В.О. Харченко (реферат, вступ, розд.1, висновки)
Виконавці:	
Ст. наук. співр. канд. фіз.-мат. наук (24.12.2018)	І.О. Лисенко (розд.1)
Ст. наук. співр. канд. фіз.-мат. наук (24.12.2018)	О.М. Щокотова (розд.1)
Ст. викладач канд. фіз.-мат. наук (24.12.2018)	А.М. Заскока (розд.1)
Ст. викладач канд. фіз.-мат. наук (24.12.2018)	Т.І. Жиленко (розд.1)
Ст. викладач канд. фіз.-мат. наук (24.12.2018)	В.М. Борисюк (розд.1)
Асистент мол. наук. співр. (24.12.2018)	А.Ю. Бадалян (розд.1)
Студент лаборант (24.12.2018)	А.Ю. Овчаренко (розд.1)
Студент лаборант (24.12.2018)	Я.А. Голоденко (розд.1)

## РЕФЕРАТ

Звіт про НДР: 52 с., 22 рис., 63 джерел.

### АДСОРБЦІЯ, ДЕСОРБЦІЯ, ДИФУЗІЯ, СИСТЕМА ПЛАЗМА-КОНДЕНСАТ, СТРУКТУРОУТВОРЕННЯ, ФЛУКТУАЦІЯ.

Об'єкт дослідження — процеси формування та росту наноструктурованих тонких плівок у процесах осадження в системах плазма-конденсат.

Метою роботи є встановлення умов та інтервалів зміни основних параметрів системи, що зводяться до тиску всередині камери, температури ростової поверхні, напруженості підведеного до підкладки зовнішнього електричного поля та флуктуацій потоку адсорбату на, коли на поверхні підкладки з плином часу можливим стає формування відокремлених поверхневих структур. До мети також відноситься встановлення впливу амплітуди періодичних та інтенсивності стохастичних змін напруженості електричного поля на процеси переходу системи з розбавленої фази з малою концентрацією адсорбату на поверхні, до щільної фази, коли досягається критичне пересичення, необхідне для проходження процесів самоорганізації адсорбату з формуванням просторових структур.

Методи дослідження — в роботі використовувались методики дослідження фазових переходів, метод лінійного аналізу на стійкість стаціонарних однорідних станів до однорідних та неоднорідних збурень, метод числового інтегрування стохастичних диференціальних рівнянь та методи статистичного аналізу.

## ЗМІСТ

ВСТУП	5
1 УМОВИ КОНТРОЛЮВАННЯ МОРФОЛОГІЄЮ ЗРОСТАЮЧОЇ ПОВЕРХНІ, ТИПОМ ТА РОЗМІРОМ ПОВЕРХНЕВИХ СТРУКТУР В СИСТЕМІ ПЛАЗМА-КОНДЕНСАТ	9
1.1 Математична модель системи плазма-конденсат . . . . .	9
1.2 Переходи від стану з низькою концентрацією до стану з високою концентрацією у стохастичній бістабільній системі плазма-конденсат . . . . .	15
1.3 Способи контролю морфологією поверхні у детерміністичній моделі плазма-конденсат . . . . .	21
1.4 Вплив флуктуацій потоку адсорбату на динаміку структурування тонких плівок . . . . .	30
1.5 Оцінка отриманих даних числового моделювання . . . . .	41
ВИСНОВКИ	42
СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ	45
ПЕРЕЛІК ДЖЕРЕЛ ПОСИЛАНЬ	46

## ВСТУП

Тонкі плівки відносяться до шару будь-якого матеріалу, який має товщину від одного атомного шару до декількох мікрметрів, а наноструктури відносяться до будь-якого матеріалу, що складається з нанорозмірних частинок. Ці об'єкти стали невід'ємною частиною сучасних технологій, з застосування від мікроелектроніки (будучи частиною мініатюрних приладів) до виготовлення різальних інструментів для мікрообробки [1]. На сьогоднішній день такі наноструктуровані тонкі плівки набувають зростаючого інтересу через їх технологічні застосування в сучасних нано-електронних пристроях завдяки винятковим функційним здібностям [2–5]. Екзотичні нові матеріали, що характеризуються малими розмірами можуть використовуватися для утворення метастабільних сплавів, або плівок з метою створення зовсім іншої атомної структури, накладеної підкладкою. Тонкі плівки використовуються сьогодні в широкому діапазоні застосувань, таких як покриття для інструментів різання, оптичні та декоративні покриття, застосування сонячних батарей, а також як дифузійні шари в інтегральних схемах.

Вирощування плівок може здійснюватися за допомогою ряду методів осадження. Серед них можна виділити хімічне осадження з газової фази [1,6], коли хімічні реакції зумовлюють осадження, а стан хімічного з'єднання адатомів відрізняється від з'єднання частинок в газовій фазі. Інші методи, а саме сольгель синтез [7,8], атомне осадження шару, осадження електронним пучком [9], розпилення [10], імпульсне лазерне осадження [11], піроліз з ультразвуковим спреєм [12–15], розпилювальне напилення [16] можна об'єднати в фізичні процеси осадження, оскільки при цих методиках частинки з парової фази осаджуються на підкладку фізичними засобами. Плазмоконденсатні пристрої широко використовуються для виробництва відокремлених сферичних структур адсорбату на поверхні з невеликим лінійним розміром [17,18]. У таких системах процес росту відокремлених багат шарових структур адсорбату відбувається за наступним механізмом. Іони, розпилені магнетроном, досягають зростаючої поверхні, яка розташована в порожнистому катоді і стають адатомами. Че-

рез наявність електричного поля поблизу підкладки певна частина адатомів повторно випаровується (десорбується з підкладки), щоб знову іонізуватись і повертається назад до верхніх шарів зростаючої поверхні [19]. Отже, системи плазма-конденсат характеризуються анізотропією в переходах адатомів між сусідніми шарами, що індукується дією електричного поля, підведеного до підкладки. За допомогою різних методів осадження можна виготовляти різні типи структур, а саме: періодично розташовані наноотвори в матричній фазі (острови вакансій), [20], видовжені острови адсорбованих напівпровідників [21, 22] та металів [23] та сферичні вакансії острови (нано-отвори) або острови адсорбату (нано-точки) [24–28].

Властивості плівки тісно пов'язані з її мікроструктурою, яка, в свою чергу, може бути змінена протягом підготовки (вирощування) плівки. Відповідно до роботи [29], морфологія наноструктурованих плівок залежить від певної кількості факторів, серед яких можна виділити температуру, матеріал підкладки, тиск всередині камери. Раніше було показано, що можна концентрацією адсорбату на підкладці та відповідними фазовими переходами першого роду між станами з низькою та високою густиною адсорбату можна контролювати за допомогою зміни температури, швидкості адсорбції та десорбції [30–37]. В той же час було показано, що багатошарові системи газ-конденсат проявляють каскад фазових переходів першого роду, коли формується новий додатковий шар адсорбату [38, 39]. Такі системи в основному вивчалися за умови рівноймовірних переходів адатомів між сусідніми шарами, відповідно до стандартного механізму вертикальної дифузії [40, 41].

Залежно від того, чи зв'язок між однаковими адатомами сильніший, ніж між адатомами та атомами субстрату, можна виділити три основних режими зростання тонких плівок: а) режим тривимірного або острівкового росту, також відомий як режим Волмера-Вебера; б) 2-мірне або пошарове зростання, також відоме як режим Френка-ван-дер-Мерре; в) змішаний режим, що розпочинається 2-мірним зростанням, яке переходить в острівний режим після заповнення одного або декількох моношарів; цей режим також відомий як Режим Странського-Крастанова [42]. Кластери адатомів останнім часом привертати

велику увагу у сучасних напрямках електроніки, напівпровідників, біомагнетиків, каталізу і магнетизму [43–46].

Процеси росту тонких плівок та відповідних островів Волмер-Вебера включають в себе безліч атомно-масштабних процесів, які не можуть завжди легко вивчатися експериментально. Числове моделювання служить альтернативним методом для детального вивчення динаміки формування структур в таких системах. Такі підходи можуть бути використані для прогнозування морфології зростаючої поверхні в різних умовах росту тонких плівок [38, 47]. Для тестування теоретичних моделей росту тонких плівок виконуватися різні типи комп'ютерних симуляції. У задачах формування структур зазвичай розглядаються реакційно-дифузійні системи, які відіграють важливу роль у вивченні загальної просторово-часової поведінки нерівноважних систем. Ці моделі містять основні внески, пов'язані як з локальною динамікою (хімічні реакції типу народження та смерті) так і з масоперенесенням. Такий підхід дає можливість контролювати динаміку самоорганізації ансамблю адатомів, морфологію зростаючої поверхні, тип структур та лінійний розмір структур адсорбату або отворів (вакансії) в матричній фазі.

Адсорбційні бістабільні системи можуть проявляти ефекти стохастичного резонансу в умовах періодично змінюваного тиску газоподібної атмосфери (див., наприклад, [48]), або хімічного потенціалу [49]. У технологічних додатках цей ефект стохастичного резонансу використовується для оптимізації співвідношення вихідного сигналу до шуму, коли коливання (шум) грають конструктивну роль і посилюють відповіді нелінійної динамічної системи, підданої слабкому зовнішньому періодичному сигналові [50, 51].

Відомо, що осциляції можуть відігравати визначну роль у проблемах формування структур та самоорганізації в цілому. Флюктуаційно-індуковані ефекти вивчалися в різних класах задач [52, 53]. Розглядаючи задачу формування кластерів адсорбату при конденсації, флюктуації, як правило, вважаються незначними. Тим не менше, раніше було показано, що флюктуації поперечного потоку адсорбату на підкладці при епітаксiальному рості призводять до утворення голко-подібних структур. Під час адсорбції в стохастичній моделі газ-

конденсат флуктуації, що пов'язані із внутрішньою динамікою системи, регулюють фазові переходи між щільною та розбавленою фазами та керують типом та розміром поверхневих структур [32].

У даній роботі нами буде проведено теоретичне дослідження динаміки перерозподілу концентрації адсорбату на одному з шарів багато-шарової системи плазма-конденсат з урахуванням анізотропії в переходах адатомів між шарами, викликаній дією підведеного до підкладки зовнішнього електричного поля. Буде побудовано узагальнену теоретичну модель для опису процесів формування просторових відокремлених поверхневих структур на одному з шарів багато-шарової системи, що визначає формування пірамідальних структур.

У припущенні, що сила такої анізотропії, яка визначається напруженістю електричного поля, змінюється у часі періодичним та стохастичним чином, буде досліджено однорідну систему з метою встановлення залежності часу переходу системи від стану з низькою густиною адсорбату до стану з високою густиною адсорбату від параметрів зовнішнього періодичного та стохастичного навантаження. Буде виявлено умови оптимізації цього часу.

Встановлення умов та режимів контролювання динамікою структурування поверхні, морфологією поверхні, типом та розміром поверхневих структур буде проведено в рамках числових симуляцій просторово-розподіленої системи зі стаціонарним значенням напруженості електричного поля. Буде встановлено вплив тиску всередині камери, температури (енергії взаємодії адсорбату) та напруженості електричного поля на статистичні властивості наноструктурованих тонких плівок в системах плазма-конденсат.

Буде проведено узагальнення моделі з урахуванням флуктуацій поверхневого потоку адсорбату та виявлено вплив збільшення їх інтенсивності на морфологічні перетворення в структурі поверхні шару, тип та лінійний розмір поверхневих структур, їх кількість та розподіл структур за розмірами.



# 1 УМОВИ КОНТРОЛЮВАННЯ МОРФОЛОГІЄЮ ЗРОСТАЮЧОЇ ПОВЕРХНІ, ТИПОМ ТА РОЗМІРОМ ПОВЕРХНЕВИХ СТРУКТУР В СИСТЕМІ ПЛАЗМА-КОНДЕНСАТ

## 1.1 Математична модель системи плазма-конденсат

Для опису еволюції концентрації адсорбату на підкладці у багато-шаровій системі при конденсації з газової фази (або плазми) будемо досліджувати динаміку поля концентрації на кожному  $n$ -тому рівні (шарі)  $x_n(\mathbf{r}, t) \in [0, 1]$ ,  $n = 1 \dots N$ , визначену як відношення кількості адсорбованих атомів до кількості місць для адсорбції (вузлів) у певні області даного шару; тут  $\mathbf{r} = \{x, y\}$  визначає просторову координату на шарі, а  $t$  це часова змінна. У такому разі просторово-часова еволюція поля концентрація адсорбату на кожному рівні багато-шарової системи задається рівнянням реакційно-дифузійного типу у стандартному вигляді:

$$\partial x_n(\mathbf{r}, t) = f(x_n) - \nabla \cdot \mathbf{J}_n, \quad (1.1)$$

де  $f(x_n)$  задає реакційну складову, що визначає процеси “народження-смерті”, та  $\mathbf{J}_n$  – потік адсорбату по шару, пов’язаний з перенесенням маси; індекс  $n$  задає номер шару багато-шарової системи. Відповідно до стандартного підходу опису процесів конденсації реакційна складова  $f(x_n)$  включає адсорбцію (збільшення локальної концентрації адсорбату зарахунок того, що атом/іон досягає певного шару і стає адатомом) та десорбцію (зменшення локальної концентрації адсорбату коли адатом з ненульовою ймовірністю покидає шар та десорбує назад у газову фазу). Крім того, при описі багато-шарових систем, дискретних у вертикальному напрямку (за кількістю шарів) необхідно також врахувати переходи адатомів між найближчими сусідами. При цьому слід врахувати як ізотропні переходи з однаковою ймовірністю переходу як з верхнього шару на нижній, так і з нижнього на верхній; так і анізотропні переходи, коли такі ймовірності різняться, що може бути індуковано зовнішнім впливом. Схематичне зображення багатошарових структур адсорбату та протікаючих квазі-хімічних реакцій наведено на рис. 1.1.

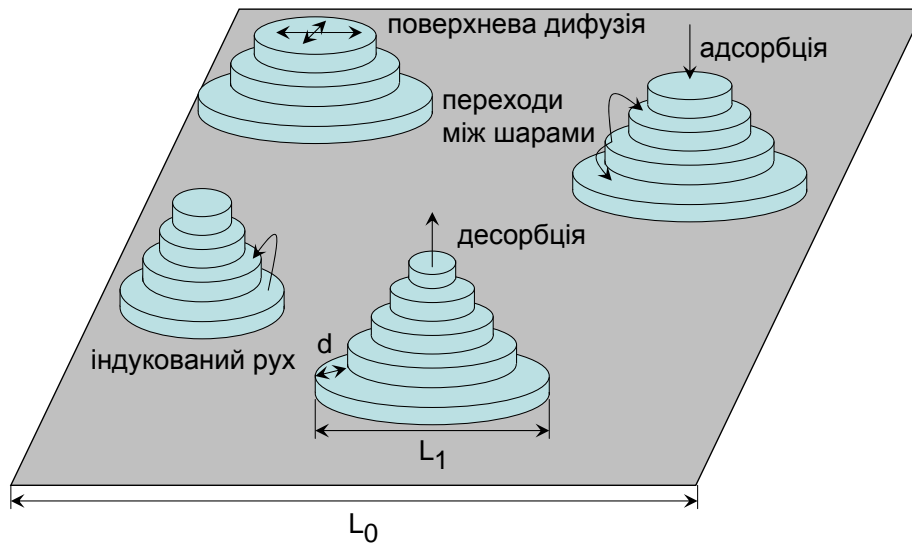


Рисунок 1.1 — Схематичне зображення багатошарових структур адсорбату та протікаючих квазі-хімічних реакцій

Процеси адсорбції описуються складовою  $k_a x_{n-1}(1-x_n)(1-x_{n+1})$ , де  $k_a = \varpi p \exp(-E_a/T)$  це коефіцієнт адсорбції, визначений через тиск всередині камери  $p$ , енергію активації адсорбції  $E_a$ , температуру  $T$ , виміряну в енергетичних одиницях, та частотний фактор  $\varpi$ . Ці процеси потребують  $(1-x_n)$  вільних місць на даному шарі,  $(1-x_{n+1})$  вільних місць на наступному шарі та ненульової концентрації адсорбату  $x_{n-1}$  на попередньому шарі, що слугуватиме субстратом для адсорбції на  $n$ -ому шарі. Адсорбовані частинки (адатоми) можуть десорбуватися з шару зі швидкістю  $k_d = k_d^0 \exp(U_n/T)$ , визначеної через коефіцієнт десорбції невзаємодіючих частинок  $k_d^0 = \varpi \exp(-E_d/T)$ , де  $E_d$  це енергія активації десорбції, та потенціал взаємодії  $U_n(\mathbf{r})$ . Середній час життя адатому  $\tau_d$  визначається через  $k_d^0$  стандартним чином:  $\tau_d = [k_d^0]^{-1}$ . Розглядаючи випадок десорбції, що підтримується попереднім шаром, який відіграє роль підкладки для даного шару, процеси десорбції описуються виразом  $-k_d x_n x_{n-1}(1-x_{n+1})$ . Розглядаючи багато-шарову систему слід врахувати, що адатоми можуть рухатись між сусідніми шарами з імовірностями руху зверху-вниз  $\omega_\downarrow$  та знизу-вверх  $\omega_\uparrow$ . У граничному випадку  $\omega_\downarrow = \omega_\uparrow$  отримуємо стандартну вертикальну дифузю [39]. У загальному випадку ці ймовірності можуть різнитися. Наприклад, у випадку конденсації з газової фази у слабкому вакуумі тиск газової фази індукує анізотропію у вертикальних переходах адатомів між шарами з переважаю-

чими переходами від верхніх шарів до нижніх, що приводить до  $\omega_{\uparrow}/\omega_{\downarrow} < 1$  [38]. У системах плазма-конденсат підведене до підкладки електричне поле індукує зворотний анізотропний рух атомів з  $\omega_{\uparrow}/\omega_{\downarrow} > 1$  [47]. У останньому випадку можна покласти  $\omega_{\uparrow} = \omega_{\downarrow} + \omega_E$ , де сила анізотропії переходів адатомів між сусідніми шарами з переважаючими переходами знизу-вверх  $\omega_E = |\mathbf{E}|Ze/T$  пропорційна до напруженості електричного поля біля підкладки  $|\mathbf{E}|$ ;  $Z$  це координаційне число та  $e$  це заряд електрона. Враховуючи, що такі переходи можливі лише на вільні місця, для реакцій переходів адатомів між шарами маємо:  $\omega_{\downarrow}(x_{n-1} + x_{n+1} - 2x_n) + \omega_E[x_{n-1}(1 - x_n) - x_n(1 - x_{n+1})]$ , де перший доданок визначає стандартну вертикальну дифузію, а другий пов'язаний із індукованою електричним полем анізотропією.

Розглядаючи адатоми як мобільні взаємодіючі частинки потік адсорбату на певному  $n$ -тому шарі  $\mathbf{J}_n$  має включати як вільну поперечну дифузію, що задається відповідно до стандартного визначення  $-D_{\leftrightarrow}\nabla x_n$  з коефіцієнтом поперечної дифузії  $D_{\leftrightarrow}$ , так і дифузійну складову, що визначається потенціалом взаємодії адсорбату  $U_n(r)$  у наступному вигляді  $-D_{\leftrightarrow}/T\mu(x_n)\nabla U_n$ , де  $\mu(x_n) = x_n(1 - x_n)$  визначає, що ця дифузія можлива лише на місця, вільні від адсорбату. Відповідно до робіт [31–33, 38–41, 47] потенціал взаємодії  $U_n(r)$  може бути визначений в рамках апроксимації самоузгодженого підходу через бінарний притягуючий потенціал для двох адатомів, розділених відстанню  $r$  у наступному вигляді  $U_n(r) = -x_{n-1}(\mathbf{r}) \int u(\mathbf{r} - \mathbf{r}')x_n(\mathbf{r}')d\mathbf{r}'$ . Тут нами враховано, що така взаємодія на певному  $n$ -тому шарі відбувається за умови наявності ненульової концентрації адсорбату на  $(n - 1)$ -ому шарі багат шарової системи. Відповідно до робіт [30, 36] будемо вважати, що бінарний потенціал  $u(r)$  має симетричну форму, тобто  $\int \mathbf{r}^{2m+1}u(\mathbf{r})d\mathbf{r} = 0$ ,  $m = 1, \dots, \infty$ . У якості найпростішої апроксимації із заданими властивостями оберемо Гаусіан у стандартному вигляді

$$u(r) = \frac{2\epsilon}{\sqrt{4\pi r_0^2}} \exp\left(-\frac{r^2}{4r_0^2}\right), \quad (1.2)$$

де  $\epsilon$  це енергія взаємодії адсорбату та  $r_0$  це радіус взаємодії адатомів. Припускаючи, що концентрація адсорбату  $x$  змінюється досить слабо в рамках радіусу

взаємодії, можна використати розклад інтегралу

$$\int u(\mathbf{r} - \mathbf{r}')x_n(\mathbf{r}')d\mathbf{r}' \simeq \int u(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \sum_m \frac{(\mathbf{r} - \mathbf{r}')^m}{m!} \nabla^m x_n(\mathbf{r})d\mathbf{r}'. \quad (1.3)$$

Підставляючи рівняння (1.2) до рівняння (1.3) до складових четвертого порядку отримуємо потенціал взаємодії у вигляді:

$$U(r) \simeq -\epsilon x_{n-1} [x_n + (1 + r_0^2 \nabla^2)^2 x_n], \quad (1.4)$$

де

$$\begin{aligned} \int u(r)x_n(r)dr &= 2\epsilon x_n, \\ 1/2! \int u(r)r^2 \nabla^2 x_n(r)dr &= 2\epsilon r_0^2 \nabla^2 x_n, \\ 1/4! \int u(r)r^4 \nabla^4 x_n(r)dr &= \epsilon r_0^4 \nabla^4 x_n \end{aligned}$$

з використанням умови  $r_0^{2m} \rightarrow 0$  при  $m > 2$ .

У загальному випадку для опису процесів формування багат шарових структур при конденсації у випадку дискретної моделі опису системи у вертикальному напрямку за кількістю шарів необхідно одночасно розв'язувати  $N$  реакційно-дифузійних рівнянь (1.1). При цьому збільшення кількості шарів приводить до суттєвого збільшення часу обчислень та потребує великих обчислювальних потужностей. У такому разі постає актуальна проблема побудови одношарової моделі, яка б адекватно описувала процеси формування та росту відокремлених поверхневих структур на певному шарі багато-шарової системи. При цьому така одно-шарова модель має задовольняти наступним критеріям: 1) концентрація адсорбату на кожному наступному шарі має бути меншою за концентрацію адсорбату на попередньому шарі; 2) лінійний розмір структур має зменшуватися з ростом номеру шару; 3) повинні бути враховані переходи адатомів між шарами. Для побудови такої моделі необхідним є встановлення певної функціональної залежності концентрації адсорбату на сусідніх  $(n + 1)$ -ому та  $(n - 1)$ -ому шарх від концентрації адсорбату ша  $n$ -ому шарі. Для цього будемо використовувати рецепт, запропонований в роботі [54] та визначемо концентрацію адсорбату на кожному  $n$ -ому шарі у наступний спосіб:  $x_n = S_n/S_0$ , де  $S_0 \propto L_0^2$  відповідає площі субстрату (підкладки) з лінійним розміром  $L_0$  та

$S_n = \sum_i s_{ni} = \pi/4 \sum_i L_{ni}^2$  задає площу, яку покриває адсорбат на даному шарі; сума береться за всіма структурами (див. рис. 1.1). Формально, цю площу можна подати у вигляді  $S_n \propto r_n^2$ , де  $r_n$  задає лінійний розмір сформованої сумарної структури адсорбату на  $n$ -ому шарі. Враховуючи те, що концентрація відповідно до принципу мінімізації поверхневої енергії концентрація адсорбату зменшується з ростом номеру шару, то лінійний розмір  $r_n$  також зменшується зі збільшенням номеру шару і у найпростішому вигляді його можна подати зв'язком  $r_n = r_1 - (n-1)d$ , де  $d$  задає довжину тераси пірамідальних структур (див. рис. 1.1). У такому разі концентрація адсорбату на  $n$ -ому шарі задається виразом:  $x_n = (S_1/S_0)[1 - (n-1)d/r_1]^2$ , а для концентрації адсорбату на сусідніх  $(n-1)$ -ому та  $(n+1)$ -ому рівнях отримуємо наступні вирази:

$$x_{n\pm 1} = \frac{S_1}{S_0} \left\{ \left[ 1 - (n-1)\frac{d}{r_1} \right] \mp \left[ \frac{d}{r_1} \right] \right\}^2 = \underbrace{\frac{S_1}{S_0} \left( 1 - (n-1)\frac{d}{r_1} \right)^2}_{x_n} \mp 2 \frac{d}{r_1} \frac{S_1}{S_0} \underbrace{\left( 1 - (n-1)\frac{d}{r_1} \right)}_{\sqrt{x} \sqrt{S_0/S_1}} + \frac{S_1}{S_0} \left( \frac{d}{r_1} \right)^2. \quad (1.5)$$

Після певних алгебраїчних перетворень отримуємо

$$x_{n\pm 1} = (\sqrt{x_n} \mp \beta/2)^2, \quad (1.6)$$

де  $\beta = 2d/L_0 < 1$ . Таким чином, використовуючи рівняння (1.6) реакційна складова  $f(x = x_n)$  набирає вигляду:

$$f(x) = \alpha(1-x)\nu(x) - x\nu(x)e^{-2\varepsilon x(\sqrt{x} + \frac{1}{2}\beta)^2} + u\beta_0\sqrt{x}(1-2x) + \frac{1}{4}\beta^2(u + 2D_{\downarrow}), \quad (1.7)$$

де уведено безрозмірні параметри  $\varepsilon \equiv \epsilon/T$ ,  $\alpha \equiv k_a/k_d^0$ ,  $u = \omega_E/k_d^0$ ,  $D_{\downarrow} \equiv \omega_{\downarrow}/k_d^0$  та використано наступні позначення:  $\nu(x) = (\sqrt{x} + 1/2\beta)^2 [1 - (\sqrt{x} - 1/2\beta)^2]$ .

Керуючий параметр  $u$ , що визначається напруженістю підведеного до підкладки електричного поля, та задає силу анізотропії у переходах атомів між сусідніми шарами, у загальному випадку може змінюватись з часом. При чому такі зміни можуть бути як періодичні, так і випадкові (стохастичні). Нами буде досліджено випадок, коли сила анізотропії  $u$  зазнає як періодичних осциляцій,

так і стохастичної зміни:

$$u = u_0 + A \sin(\omega t) + \varpi(t) \quad (1.8)$$

де  $u_0 = \langle u \rangle$  визначає певне середнє значення, а  $\varpi(t)$  є Гаусів білий шум з наступними властивостями:  $\langle \varpi(t) \rangle = 0$ ,  $\langle \varpi(t) \varpi(t') \rangle = 2\sigma^2 \delta(|t - t'|)$ ;  $\sigma^2$  це інтенсивність цих флуктуацій.

Загальний потік адсорбату  $\mathbf{J}$  має вигляд:

$$\mathbf{J} = -D_{\leftrightarrow} [\nabla x - \varepsilon \gamma(x) \nabla \{x + (1 + r_0^2 \nabla^2)^2 x\}], \quad (1.9)$$

де  $\gamma(x) = \mu(x)(\sqrt{x} + 1/2\beta)^2$ . Потік адсорбату (1.9) можна ефективно розділити на два складових, а саме:  $\mathbf{J}_1 = -D_{\leftrightarrow}(1 - \varepsilon \gamma(x)) \nabla x$  та  $\mathbf{J}_2 = D_{\leftrightarrow} \varepsilon \gamma(x) \mathcal{L}_{SH} x$ , де використано позначення оператора Свіфта-Хохенберга  $\mathcal{L}_{SH} = (1 + r_0^2 \nabla^2)^2$  [55]. Формально, потік  $\mathbf{J}_2$  описує вплив мікро-рівня (взаємодіючі адатоми) на процес формування структур адсорбату на мезо-рівні, де опис динаміки системи проводиться з використанням локальної концентрації адсорбату, як основної змінної. У загальному випадку потік  $\mathbf{J}_2$  має як регулярну, так і стохастичну частини:

$$\mathbf{J}_2 = D_{\leftrightarrow} \varepsilon \gamma(x) \mathcal{L}_{SH} x + \zeta(x; \mathbf{r}, t), \quad (1.10)$$

де для стохастичного доданку  $\zeta(x; \mathbf{r}, t)$  використано Гаусові властивості:  $\langle \zeta(x; \mathbf{r}, t) \rangle = 0$ ,  $\langle \zeta(x; \mathbf{r}, t) \zeta(x; \mathbf{r}', t') \rangle = 2\Sigma \mathcal{D}(x) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \delta(t - t')$ . Тут  $\mathcal{D}(x) = D_{\leftrightarrow} \varepsilon \gamma(x)$ , а  $\Sigma$  задає інтенсивність цих флуктуацій. Таким чином, об'єднуючи рівняння (1.7)-(1.10), враховуючи часові зміни в силі анізотропії вертикально руху адатомів між шарами (1.8) та уводячи дифузійну довжину  $L_d \equiv \sqrt{D_{\leftrightarrow}/k_d^0}$  рівняння еволюції концентрації адсорбату на певному шарі багато-шарової системи плазма-конденсат набуває вигляду:

$$\begin{aligned} \frac{\partial x}{\partial t} = & f(x) + A \gamma(x) \sin(\omega t) + \gamma(x) \varpi(t) - L_d^2 \nabla \cdot \mathbf{J} \\ & - \frac{\Sigma}{2} \nabla \cdot \left( \nabla \frac{d\mathcal{D}}{dx} \right) + \nabla \sqrt{\mathcal{D}(x)} \xi(\mathbf{r}, t), \end{aligned} \quad (1.11)$$

де  $\langle \xi(\mathbf{r}, t) \rangle = 0$  та  $\langle \xi(\mathbf{r}, t) \xi(\mathbf{r}', t') \rangle = 2\Sigma \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \delta(t - t')$ .

Далі нами буде окремо досліджено однорідну систему при  $\nabla x = 0$  з метою встановлення впливу періодичних осциляцій та відповідних флуктуацій зміни

сили анізотропії переходів адатомів між шарами на час переходу системи від розрідженого стану, що відповідає малому значенню концентрації адсорбату, до щільного стану з високою концентрацією адсорбату, коли досягається критичне пересичення, достатнє для формування поверхневих структур.

## 1.2 Переходи від стану з низькою концентрацією до стану з високою концентрацією у стохастичній бістабільній системі плазма-конденсат

У цьому розділі нами досліджено переходи від стану з низькою густиною адсорбату до стану з високою концентрацією адсорбату в бістабільних системах плазма-конденсат з урахуванням анізотропії у переходах адатомів між сусідніми шарами, викликані дією підведеного до підкладки електричного поля. В рамках узагальненої одношарової моделі досліджуються ефекти пов'язані з періодичними коливаннями та флуктуаціями напруженості електричного поля. При цьому нами буде досліджено однорідну систему, поклавши в рівнянні (1.11)  $\nabla x = 0$ . Буде встановлено особливості зовнішнього впливу на середній час переходу від стану з низькою густиною адсорбату до стану з високою концентрацією адсорбату. Буде показано можливість оптимізацій середнього часу переходу з частотою періодичних коливань у границі слабких флуктуацій. Детально вивчаються ефекти впливу відповідних флуктуацій, пов'язані з асинхронізацією та прискоренням в динаміці переходів.

Перш за все дослідимо стаціонарні стани однорідної детерміністичної системи, поклавши  $d_t x = 0$ . Аналізуючи залежності однорідних стаціонарних станів від параметрів системи нами було встановлено фазову діаграму, що ілюструє вплив напруженості електричного поля на стани системи, яку наведено на рис. 1.2. Тут, всередині області II система є бістабільною. Біфуркаційна діаграма  $x(\alpha)$ , що ілюструє перехід першого роду зі стану з малою концентрацією адсорбату до стану з великою концентрацією адсорбату, наведена на нижній вставці при  $u = 0.3$  та  $\varepsilon = 4.0$ . З рисунка видно, що збільшення напруженості електричного поля звужує область бістабільності по коефіцієнту адсорбції  $\alpha$

(тиску всередині камери) та потребує більших значень енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon$  (менших температур) для її реалізації. Потенціал  $U(x) = -\int f(x)dx$

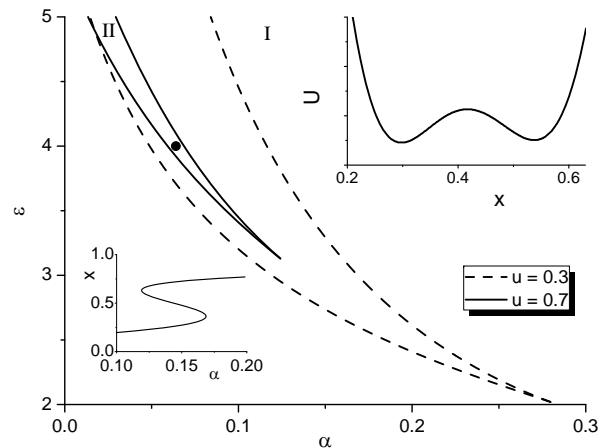


Рисунок 1.2 — Фазова діаграма системи плазма-конденсат: I – область моностабільності, II – область бістабільності

показаний на верхній вставці відповідає спінодалі та отримано при  $\alpha = 0.064$ ,  $\varepsilon = 4.0$  та  $u = 0.7$  (чорна точка всередині клину на рис. 1.2).

З аналізу однорідного рівняння (1.11) випливає, що при  $x = x_0$ , коли  $\gamma(x_0) = 0$  вплив електричного поля біля підкладки на концентрацію адсорбату зникає, і рівноважна система описується лише адсорбцією, десорбцією та ізотропною вертикальною дифузиею. При цьому  $x_0$  не є поглинаючою точкою (границею), оскільки  $f(x_0) \neq 0$ .

Зазвичай, комбінований ефект впливу періодичної та стохастичної сили у бістабільних потенціалах приводить до стохастичного резонансу. Згідно з цим ефектом слабка періодична сила рухає ефективну “Броунівську частинку”, що знаходиться в одному мінімумі потенціалу, до максимуму потенціалу, і у випадку, коли періодична сила синхронізується зі стохастичною, та остання перекидає “Броунівську частинку” через потенціальний бар’єр та відбувається перехід між двома стаціонарними станами.

Основною задачею в цьому дослідженні буде описати переходи системи плазма-конденсат зі стану з малою густиною адсорбату до стану з високою густиною адсорбату. Для цього зафіксуємо основні параметри системи, поклавши  $\alpha = 0.064$ ,  $\varepsilon = 4.0$ ,  $u_0 = 0.7$ , (чорна точка всередині клину на рис. 1.2) буде-



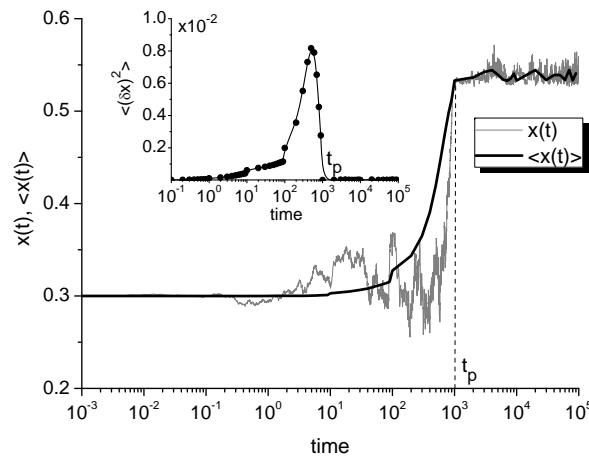


Рисунок 1.3 — Еволюція концентрації адсорбату (одна реалізація представлена сірим кольором) та середньої концентрації, усередненої за  $10^4$  реалізаціями (чорна крива). На вставці наведено залежність дисперсії. Результати отримано при  $A = 0.06$  та  $\omega = 10^{-3}$ ,  
 $\sigma^2 = 0.05$

мо розраховувати середній час, необхідний для такого переходу в залежності від параметрів періодичного та стохастичного навантаження. Для цього будемо проводити числове моделювання однорідної системи для  $10^4$  точок з використанням методів розрахунків на графічних картах, розв'язуючи рівняння Ланжевена (1.11) з  $\nabla x = 0$  з часом інтегрування  $\Delta t = 0.001$ . Такі розрахунки дають суттєве прискорення (порядку 500 разів) в отриманні результатів, порівняно із відповідними розрахунками на процесорі для даної конкретної задачі.

На рис. 1.3 наведено еволюцію концентрації адсорбату (одна реалізація представлена сірим кольором) та середньої концентрації адсорбату, усередненої за  $10^4$  реалізаціями (чорна крива). У всіх симуляціях у якості початкових умов для концентрації адсорбату було обрано мінімум потенціалу  $U(x)$ , який відповідає стаціонарному стану з низькою густиною. З отриманих результатів випливає, що протягом еволюції системи комбінований ефект впливу періодичної та стохастичної сил приводить до переходу системи в стаціонарний стан з високою концентрацією адсорбату, не досяжний у випадку чисто детерміністичної системи при фіксованих параметрах. Цей перехід відбувається в середньому за час  $t_p$ , коли дисперсія  $\langle (\delta x)^2 \rangle$  для ансамблю траєкторій спадає до нуля після максимального значення (див. вставку на рис. 1.3).

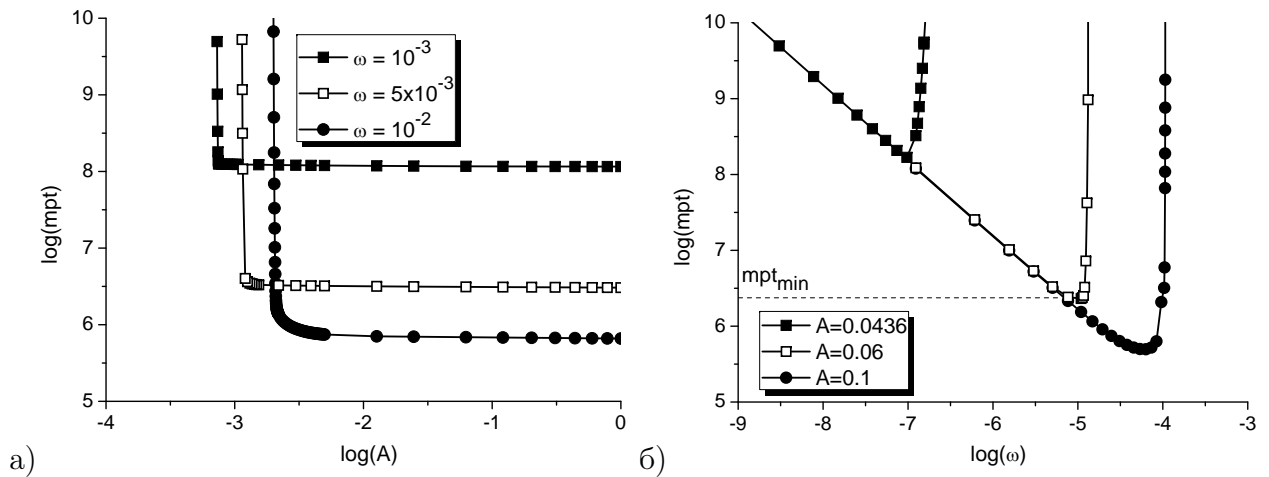


Рисунок 1.4 — Залежності середнього часу переходу  $mpt$  з розрідженої до щільної фази при  $\sigma^2 = 10^{-5}$  від а) амплітуди періодичної сили  $A$  та різних значення частоти коливань  $\omega$ ; б) частоти  $\omega$  при різних значеннях амплітуди  $A$

Далі будемо досліджувати вплив періодичного навантаження (амплітуди періодичних коливань  $A$  та їх частоти  $\omega$ ) та флуктуаційної сили (інтенсивності флуктуацій  $\sigma^2$ ) на середній час ( $mpt$ ) переходу зі стану з низькою густиною адсорбату (розріджена фаза), що відповідає мінімуму потенціалу  $U(x)$  з малим значенням  $x$  до стану з високою густиною адсорбату (щільна фаза), що відповідає мінімуму  $U(x)$  з великим значенням  $x$ , який визначається у наступний спосіб:  $mpt = N^{-1} \sum_{i=1}^N t_p$  з  $N = 10^4$  реалізацій.

Спершу ми сконцентруємо нашу увагу на дослідженні впливу періодичного навантаження у границі малих флуктуацій з  $\sigma^2 = 10^{-5}$ . Залежності середнього часу переходу  $mpt$  з розрідженої до щільної фази від амплітуди періодичної сили  $A$  та різних значення частоти коливань  $\omega$  наведено на рис. 1.4а. Залежності  $mpt$  від частоти  $\omega$  при різних значеннях амплітуди  $A$  представлені на рис. 1.4б. З рис. 1.4а випливає, що при малих значеннях амплітуди періодичної сили  $A$  перехід з розрідженої до щільної фази стає неможливим у зв'язку з тим, що  $\log(mpt) \rightarrow \infty$ , незалежно від частоти  $\omega$ . Зі збільшенням амплітуди  $A$  значення часу переходу  $mpt$  різко зменшується та набуває незмінних значень при великих значеннях  $A$ . Збільшення частоти періодичної сили  $\omega$  потребує підвищених значень амплітуди  $A$  для переходу до щільної фази, з одного боку, та приводить до зменшення часу переходу при великих значеннях амплітуди

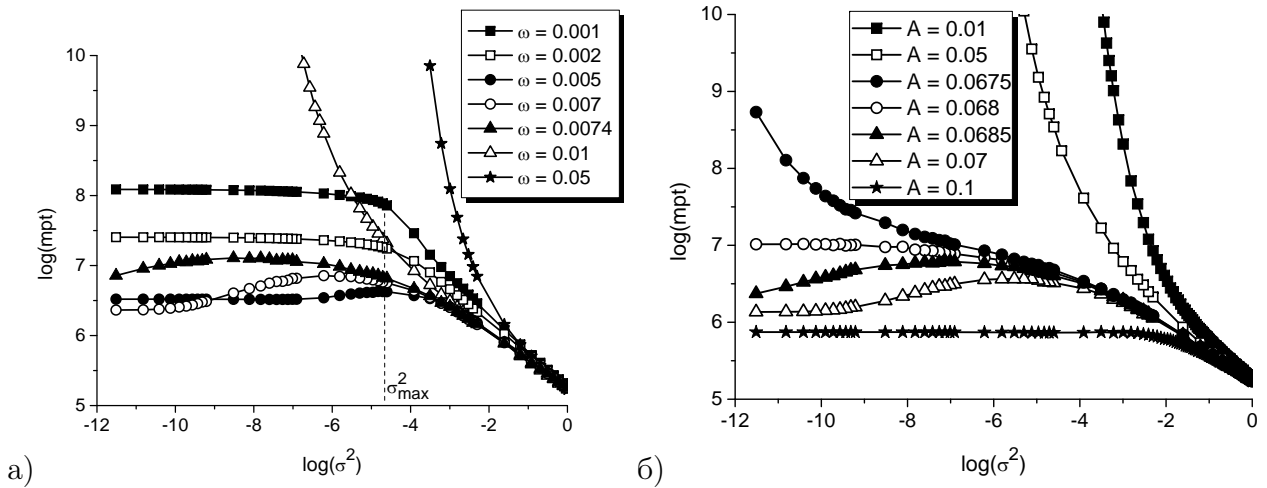


Рисунок 1.5 — Залежності середнього часу переходу з розбавленої до щільної фази від інтенсивності флуктуацій  $\sigma^2$  при: а)  $A = 0.06$  та різних значеннях частоти  $\omega$  періодичної сили; б)  $\omega = 0.01$  та різних значеннях амплітуди  $A$  періодичної сили

$A$ , з іншого боку.

Залежність  $mpt(\omega)$ , представлена на рис. 1.4б має більш складну структуру. Тут спостерігається певний випадок синхронізації: при фіксованому значенні амплітуди періодичної сили  $A$  збільшення частоти осциляцій приводить до зменшення часу переходу до щільної фази, поки не досягається мінімальне значення  $mpt_{min}$ ; з подальшим ростом частоти  $\omega$  середній час  $mpt$  збільшується. Крім того, це мінімальне значення часу переходу до щільної фази  $mpt_{min}$  зменшується з ростом амплітуди періодичної сили  $A$ . Таким чином, час, необхідний для переходу системи з розбавленої до щільної фази  $mpt$  оптимізується з частотою періодичної сили у неадіабатичному режимі.

Далі, проаналізуємо зміну в значенні часу переходу  $mpt$  при зміні інтенсивності флуктуацій  $\sigma^2$  та різних значень амплітуди  $A$  та частоти  $\omega$  періодичної сили. Відповідні залежності  $mpt(\sigma^2)$  при  $A = 0.06$  та різних значень частоти  $\omega$  наведено на рис. 1.5а. З рисунка видно, що при малих значеннях частоти періодичної сили  $\omega$  збільшення інтенсивності флуктуацій дещо зменшує час переходу (див. криву з заповненими квадратами при  $\omega = 0.001$  на рис. 1.5а). Коли  $\sigma^2$  стає достатньо великим,  $\sigma^2 > \sigma_{max}^2$ , то стохастична сила починає відігравати домінуючу роль в динаміці системи і подальше збільшення інтенсивності шуму приводить до суттєвого зменшення часу переходу з розбавленої

до щільної фази. Збільшення частоти періодичної сили при малих  $\sigma^2$  діє у спосіб, наведений на рис. 1.4б:  $mpt$  зменшується, досягає мінімального значення  $mpt_{min}$  і потім збільшується. При  $\sigma^2 < \sigma_{max}^2$  значення  $mpt_{min}$  слабо збільшується з  $\sigma^2$ . При великих значеннях частоти періодичної сили перехід від розбавленої до щільної фази відбувається при підвищених значеннях інтенсивності флуктуацій. У вузькому інтервалі значень частоти залежність середнього часу переходу системи з розбавленого до щільного стану від інтенсивності флуктуацій напруженості електричного поля проявляє немонотонну поведінку (див. криві з заповненими та пустими кружками при  $\omega = 0.005$  та  $0.007$ , та криву з заповненими трикутниками при  $\omega = 0.0074$ ). Тут зі збільшенням інтенсивності шуму час переходу до щільної фази збільшується, досягає максимального значення, та потім зменшується. Таким чином, при малих значеннях інтенсивності шуму її збільшення приводить до затримки в динаміці переходів з розбавленої до щільної фази. Іншими словами, при таких умовах комбінованого зовнішнього навантаження реалізується асинхронізація періодичної та стохастичної сили: поки періодична сила рухає “Броунівську частинку” до максимуму бістабільного потенціалу флуктуації повертають цю частину назад в мінімум потенціалу, що відповідає розбавленій фазі. З подальшим збільшенням інтенсивності флуктуацій  $\sigma^2$  шум починає відігравати визначальну роль в динаміці системи та переводить систему до щільної фази через потенціальний бар’єр.

На рис. 1.5б представлено залежності середнього часу переходу від інтенсивності флуктуацій при фіксованому значенні частоти періодичної сили  $\omega = 0.01$  та різних значеннях амплітуди періодичної сили  $A$ . З рисунка видно, що зі збільшенням амплітуди  $A$  перехід з розбавленої до щільної фази відбувається швидше. Збільшення інтенсивності флуктуацій приводить до: а) зменшення часу переходу від розбавленої до щільної фази при малих значеннях амплітуди періодичної сили; б) затримки у динаміці переходу при підвищених значеннях амплітуди періодичної сили  $A$ ; с) при підвищених значеннях  $A$  флуктуації визначають динаміку системи при великих значеннях їх інтенсивності.

### 1.3 Способи контролю морфологією поверхні у детерміністичній моделі плазма-конденсат

У даному розділі проаналізуємо можливість контролювання морфологією поверхні, типом та розміром просторових структур при варіюванні коефіцієнту адсорбції, що зводиться до тиску всередині камери, енергії взаємодії адсорбату, що задається оберненою температурою зростаючої поверхні та сили анізотропії переходів адатомів між сусідніми шарами, що визначається напруженістю підведеного до підкладки електричного поля. При цьому будемо вважати, що амплітуда періодичних змін напруженості електричного поля  $A$  та інтенсивність її флуктуацій  $\sigma^2$  є малими величинами. У такому разі вплив зовнішнього електричного поля будемо описати середнім значенням, позначеним далі  $u_E$ , поклавши у подальшому розгляді у рівнянні (1.11)  $A = 0$  та  $\sigma^2 = 0$ . Буде розглянуто чисто детерміністичну системи, враховуючи флуктуації потоку адсорбату малими, поклавши  $\Sigma = 0$ .

Спочатку проведемо аналіз на стійкість стаціонарного однорідного стану  $x_{st}$  системи (1.11) до неоднорідних збурень. Це дозволить встановити критичні значення параметрів системи, коли формуватимуться стаціонарні просторові структури. Стаціонарні однорідні значення знаходяться з умов  $\partial_t x = 0$  та  $\nabla x = 0$ . На рис. 1.6а штрих-пунктирними кривими наведено критичні значення коефіцієнту адсорбції  $\alpha$  та перенормованої напруженості електричного поля  $u$ , коли досліджувана система плазма-конденсат є бістабільною (всередині клину).

Відповідно до стандартного лінійного аналізу на стійкість вважається, що мале відхилення концентрації адсорбату  $x$  від стаціонарного значення  $x_{st}$  задається виразом  $\delta x = x - x_{st} \propto e^{\lambda(k)t} e^{ikr}$ , де  $\lambda(k)$  це показник стійкості,  $k$  це хвильове число. Розкладаючи реакційну складову  $f(x)$  в околі стаціонарного значення  $x_{st}$  отримуємо:

$$\lambda(\kappa) = \left. \frac{df}{dx} \right|_{x=x_{st}} - \kappa^2 [1 - \varepsilon\gamma(x_0) \{1 + (1 - \rho_0^2 \kappa^2)^2\}],$$

де використано позначення  $\kappa \equiv kL_d$ ,  $\rho \equiv r_0/L_d < 1$  та розглянута границя  $\rho^4 \rightarrow 0$ . У рамках такого аналізу маємо, що у випадку  $\lambda(\kappa) < 0 \forall \kappa$  форму-

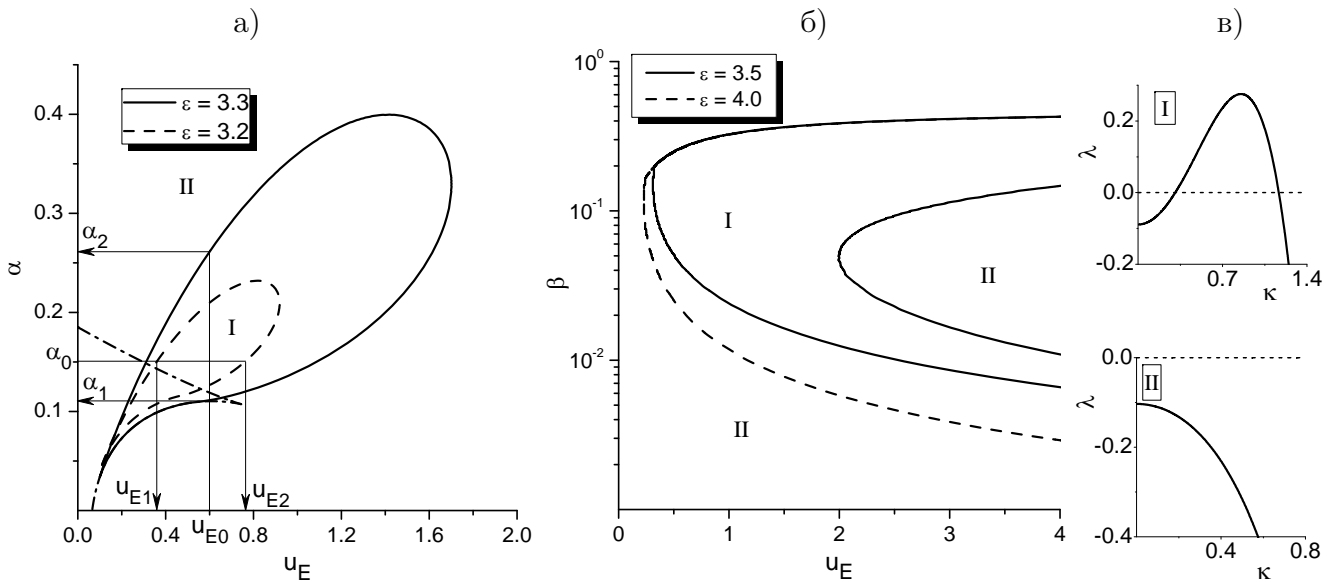


Рисунок 1.6 — Діаграми стійкості: а) при  $\beta = 0.1$ ; б) при  $\varepsilon = 3.5$  та  $\alpha = 0.2$ . в області I формуються стаціонарні просторові структури; в області II адсорбат однорідно покриває поверхню; всередині клину, обмеженого штрих-пунктирними кривими система є бістабільною. Залежності показника стійкості в) в різних областях діаграм

вання стаціонарних просторових структур є неможливим. У випадку  $\lambda(\kappa) > 0$  при  $\kappa \in [0, \kappa_c]$  реалізується сценарій типу стандартного фазового розшарування. У випадку  $\lambda(\kappa) > 0$  при  $\kappa \in [\kappa_1, \kappa_2]$  будуть формуватися відокремлені просторові стаціонарні структури, середній період розташування цих структур (середні відстань між структурами) визначається значенням  $\kappa_0^{-1}$ , коли  $\lambda(\kappa_0)$  набуває максимального значення. Відповідна діаграма стійкості  $\alpha(u_E)$  при різних значеннях  $\varepsilon$  наведена на рис. 1.6а. Тут при значенні параметрів з обмеженої області I в системі виникатимуть стаціонарні просторові структури; в області параметрів II адсорбат однорідно покриватиме шар. Принциповим є той факт, що у випадку  $u_E \rightarrow 0$  (відсутність електричного поля) формування стаціонарних структур є неможливим, оскільки у рівноважній системі адсорбція та десорбція не можуть індукувати формування стаціонарних структур. При дослідженні таких систем типу газ-конденсат для стабілізації просторових структур враховуються нерівноважні квазі-хімічні реакції  $-k_r x^n$ , що відповідають за формування стійких комплексів адатомів на поверхні [31, 32, 40, 41]. У досліджуваній системі плазма-конденсат при фіксованому  $\varepsilon$  та  $\alpha = \alpha_0$  збільшення напруженості електричного поля біля підкладки індукує формування

стаціонарних структур при  $u_E = u_{E1}$ . У той самий час, при великих  $u_E > u_{E2}$  сильна анізотропія в переходах адатомів між шарами приводить до гомогенізації системи. Збільшення швидкості адсорбції при інших фіксованих параметрах системи приводить до формування стійких просторових структур при  $\alpha > \alpha_1$ ; при  $\alpha > \alpha_2$  адсорбат однорідно покриває шар. Аналогічні ефекти зміни морфології поверхні при варіюванні тиску газової фази спостерігалися в одно- та багато-шарових системах газ-конденсат [33,38]. Порівнюючи суцільну та штрихову криві видно, що збільшення енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon$  приводить до розширення області формування стійких просторових структур.

На рис. 1.6б наведено зміну критичних значень параметра  $\beta$ , що визначає ширину тераси пірамідальних багато-шарових структур при зміні сили анізотропії  $u_E$ . З рисунку випливає, що досліджувана модель дозволяє проводити опис процесів формування пірамідальних структур з різним значенням ширини тераси  $\beta$ . При цьому, для формування більш гладких структур з малим значенням ширини тераси необхідним є висока напруженість електричного поля біля підкладки. На рис. 1.6в наведено залежності показника стійкості  $\lambda(\kappa)$  у областях  $I$  та  $II$  зверху та знизу, відповідно.

Далі будемо проводити числові симуляції розв'язуючи рівняння Ланжевена (1.11) на дво-вимірній гексагональній ґратниці з лінійним розміром  $L = 256\Delta x$  та періодичними граничними умовами. Просторові похідні другого та четвертого порядків розраховувались відповідно до стандартної кінцево-різницевої схеми. Крок інтегрування за часом складав величину  $\Delta t = 10^{-3}$ , крок інтегрування у просторі  $\Delta x = 0.5$ . У якості початкових умов було обрано Гаусів розподіл з  $\langle x(\mathbf{r}, 0) \rangle = \langle (\delta x(\mathbf{r}, 0))^2 \rangle = 10^{-2}$ . У розрахунковій схемі загальний розмір системи складав  $L \simeq 40L_d$ .

На рис. 1.7а,б наведено знімки еволюції системи при різних значеннях сили анізотропії у переходах адатомів між шарами  $u_E$ . Тут у віддінках сірого кольору наведено розподіл адсорбату по шару від чорного (мінімальне значення) до білого (максимальне) для кожного моменту часу. На рис. 1.8а,б представлено еволюцію середньої концентрації адсорбату на шарі  $\langle x \rangle$  та дисперсії поля концентрації  $\langle (\delta x)^2 \rangle$ , яка відіграє роль параметра порядку у проблемах

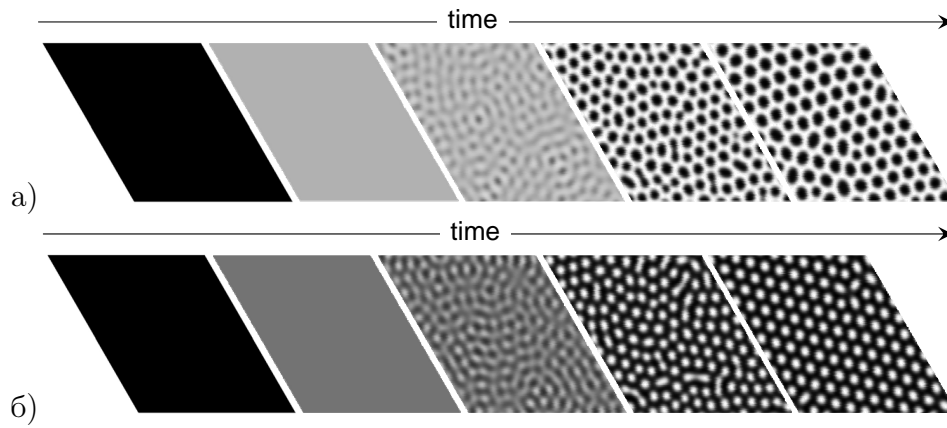


Рисунок 1.7 — Знімки еволюції системи при  $\alpha = 0.15$ ,  $\varepsilon = 3.2$  та: а)  $u_E = 0.4$ ; б)  $u_E = 0.6$

формування структур [30, 32, 33], при різних значеннях керуючих параметрів системи. З отриманих результатів випливає, що під час еволюції системи середня концентрація адсорбату на шарі зростає з часом (див. рис. 1.8а). При цьому параметр порядку  $\langle(\delta x)^2\rangle = 0$  (див. рис. 1.8б) і адсорбат однорідно розподіляється по шару. У момент часу  $t = t_c$  концентрація адсорбату досягає критичного пересичення і параметр порядку  $\langle(\delta x)^2\rangle$  починає зростати, означаючи початок процесів самоорганізації адсорбату з формуванням просторових структур адсорбату (рис. 1.7а) або отворів в матриці адсорбату (рис. 1.7б), в залежності від коефіцієнта адсорбції  $\alpha$ , енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon$  та сили анізотропії  $u_E$ . На пізніх стадіях величини  $\langle x \rangle$  та  $\langle(\delta x)^2\rangle$  набувають квазі-стаціонарних значень і на поверхні шару формуються стійкі просторові структури. З рисунків 1.8а,б випливає, що збільшення сили анізотропії  $u_E$  прискорює процеси структуроутворення та приводить до зменшення як стаціонарної концентрації адсорбату,  $\langle x \rangle_{st}$ , так і параметра порядку  $\langle(\delta x)^2\rangle_{st}$  (пор. суцільну та штрихову криві). Збільшення енергії взаємодії  $\varepsilon$  приводить до аналогічних результатів, проте стаціонарне значення параметра порядку  $\langle(\delta x)^2\rangle_{st}$  набуває більших значень, що свідчить про реалізацію більш упорядкованої просторової конфігурації (див. штрихову та штрих-пунктирну криві на рис. 1.8а,б). Збільшення коефіцієнту адсорбції  $\alpha$  приводить до затримки у процесах упорядкування поверхні та збільшення концентрації адсорбату (пор. штрих-пунктирну та пунктирну криві на рис. 1.8а,б).

За результатами аналізу досліджуваної системи плазма-конденсат на стій-



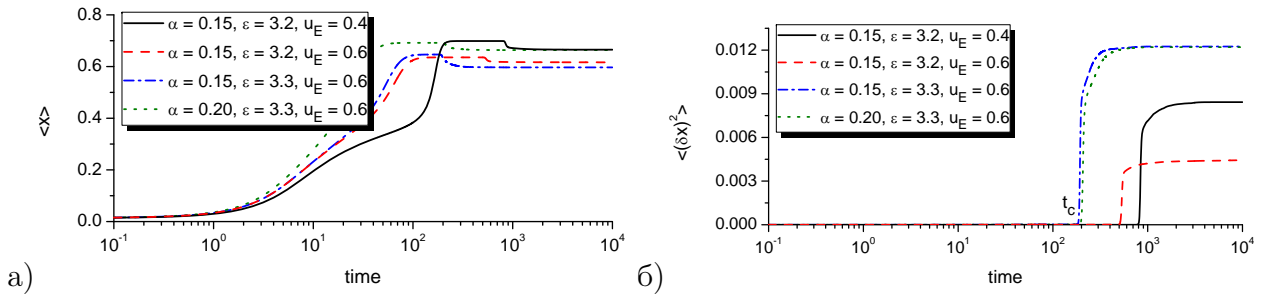


Рисунок 1.8 — Еволюція а) середньої концентрації адсорбату та б) дисперсії поля концентрації при різних значеннях параметрів системи

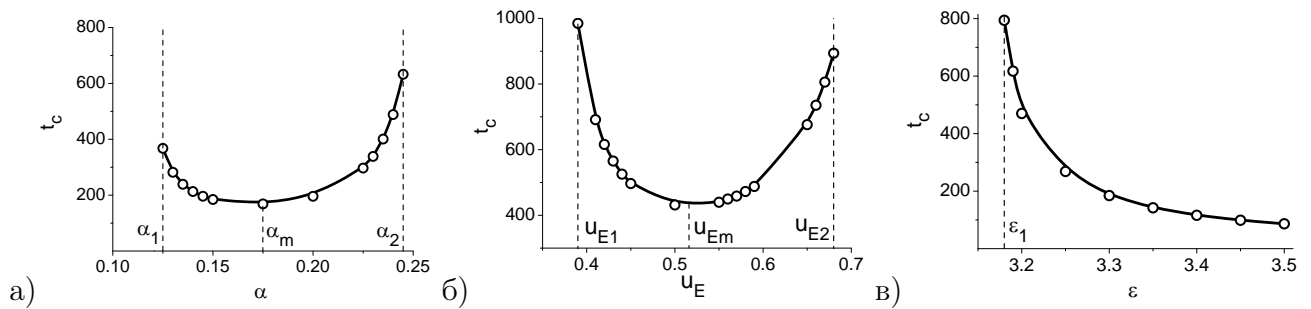


Рисунок 1.9 — Залежності моменту часу  $t_c$ , коли починають реалізуватися процеси формування структур при: а)  $\epsilon = 3.3, u_E = 0.6$ ; б)  $\epsilon = 3.2, \alpha = 0.15$ ; в)  $\alpha = 0.15, u_E = 0.6$

кість впливає, що формування стаціонарних просторових структур можливе в обмеженій області коефіцієнта адсорбції  $\alpha \in (\alpha_1, \alpha_2)$  та сили анізотропії переходів адатомів між шарами  $u_E \in (u_{E1}, u_{E2})$ . Шляхом варіювання керуючих параметрів ми будемо аналізувати момент часу  $t_c$ , коли починають реалізуватися процеси формування структур (коли зростає параметр порядку  $\langle (\delta x)^2 \rangle$ ). Відповідні залежності показані на рис. 1.9. З отриманих результатів випливає, що при фіксованому значенні енергії взаємодії адсорбату  $\epsilon$  і напруженості електричного поля  $u_E$  збільшення коефіцієнта адсорбції від  $\alpha_1$  приводить до зниження  $t_c$ , що означає прискорення процесів упорядкування (див. рис. 1.9а). Момент часу  $t_c$  оптимізується з коефіцієнтом адсорбції  $\alpha$ , досягаючи мінімального значення при  $\alpha = \alpha_m$ . Подальше збільшення коефіцієнта адсорбції призводить до затримки в динаміці упорядкування, оскільки  $t_c$  зростає з  $\alpha$ . Аналогічна ситуація спостерігається також зі зміною сили анізотропії  $u_E$  при інших фіксованих параметрах: в інтервалі  $(u_{E1}, u_{E2})$  значення моменту часу початку упорядкування в системі  $t_c$  досягає мінімального значення при  $u_E = u_{Em}$  (рис.

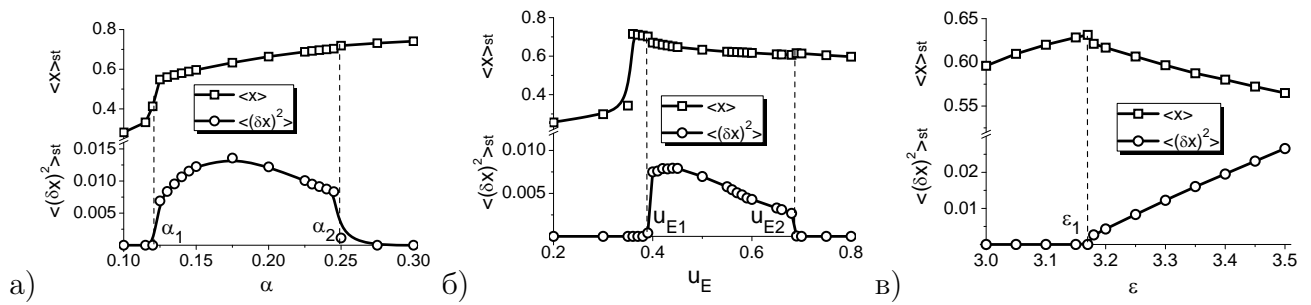


Рисунок 1.10 — Залежності стаціонарних значень середньої концентрації адсорбату  $\langle x \rangle_{st}$  та параметра порядку  $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$  при: а)  $\epsilon = 3.3$ ,  $u_E = 0.6$ ; б)  $\epsilon = 3.2$ ,  $\alpha = 0.15$ ; в)  $\alpha = 0.15$ ,

$$u_E = 0.6$$

1.9б). Збільшення сили взаємодії адсорбату (або зменшення температури ростової поверхні)  $\epsilon$  призводить до прискорення процесів упорядкування ( $t_c$  спадає з  $\epsilon$ ), за умови, коли  $\epsilon$  перевищує критичне значення  $\epsilon_1$  (див. рис. 1.9в). Слід зазначити, що критичні значення  $\alpha_{1,2}$ ,  $u_{E1,2}$  та  $\epsilon_1$ , отримані в рамках чисельного моделювання добре узгоджуються з відповідними значеннями, отриманими в рамках аналізу системи на стійкість (див. рис. 1.6 та рис. 1.9).

Далі розглянемо залежності стаціонарних значень як середньої концентрації адсорбату  $\langle x \rangle_{st}$ , так і параметра порядку  $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$ , що наведено на рис. 1.10 при різних значеннях керуючих параметрів системи. З рисунка видно, що зі збільшенням коефіцієнту адсорбції значення стаціонарної концентрації адсорбату зростає, тоді як в інтервалі  $\alpha \in (\alpha_1, \alpha_2)$  стаціонарний параметр порядку приймає ненульового значення: він збільшується до максимального значення, а потім спадає до нуля (див. рис. 1.10а). Зі зміною напруженості електричного поля при  $u_E < u_{E1}$  величина  $\langle x \rangle_{st}$  зростає, але  $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st} = 0$ . В інтервалі  $(u_{E1}, u_{E2})$  параметр порядку оптимізується (див. рис. 1.10б). Збільшення енергії взаємодії адсорбату (зменшення температури ростової поверхні)  $\epsilon < \epsilon_1$  приводить до зростання стаціонарної концентрації адсорбату з  $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st} = 0$  (див. рис. 1.10в); при  $\epsilon > \epsilon_1$  концентрація адсорбату  $\langle x \rangle_{st}$  зменшується з ростом  $\epsilon$  і поверхня стає більш впорядкованою за рахунок зростання  $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$  зростає з  $\epsilon$ .

Таким чином, з отриманих результатів в рамках аналізу системи на стійкість та числового моделювання можна зробити висновок, що збільшення або коефіцієнту адсорбції або напруженості електричного поля поблизу підклад-

ки приводить до реверсивного процесу опорядкування поверхні, що супроводжується процесами формування стаціонарних просторових структур, в багатшаровій системі плазма-конденсат. За умови малих значень напруженості електричного поля  $u_E < u_{E1}$  воно не здатне індукувати процеси структуроутворення. При  $u_E > u_{E2}$  завеликі значення напруженості електричного поля призводять до засильної анізотропії у переходах адатомів між сусідніми шарами. Це, в свою чергу, призводить до зменшення концентрації адсорбату, яка стає меншою, ніж критичне пересичення, необхідне для самоорганізації адсорбату з формуванням дисипативних структур [38]. Аналогічний сценарій реалізується при малих значеннях коефіцієнта адсорбції  $\alpha < \alpha_1$ ; у той час як при  $\alpha > \alpha_2$  високий тиск всередині камери спричиняє суттєве збільшення концентрації адсорбату. У такому разі ані десорбція, ані взаємодія, ані анізотропія у переходах адатомів між шарами не може стабілізувати просторові структури, сформовані на початкових етапах еволюції системи і адсорбат однорідно покриває весь шар, що приводить до пошарового зростання поверхні.

Далі, проаналізуємо вплив основних керуючих параметрів системи на зміну морфології поверхні, тип, кількість і лінійні розміри структур адсорбату/отворів, які реалізуються при осадженні в квазістаціонарному режимі (при великому часі). На рис. 1.11а,б,в наведено зміну морфології поверхні при зміні коефіцієнта адсорбції  $\alpha$ , сили анізотропії  $u_E$  та енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon$ , відповідно. Спочатку розглянемо вплив коефіцієнта адсорбції на морфологію шару (див. рис. 1.11а). З нього випливає, що у випадку  $\alpha > \alpha_1$  (див. рис. 1.9а,1.10а) на поверхні шару формуються відокремлені острова адсорбату (див. знімок для значення  $\alpha = 0.13$ ). Зі збільшенням коефіцієнта адсорбції структури зростають в розмірах і стають витягнутими. При  $\alpha \simeq \alpha_m$  отримуємо лабиринтоподібну структуру (див. знімок для  $\alpha = 0.175$ ) і при  $\alpha > \alpha_m$  вона перетворюється в окремі отвори всередині матриці адсорбату (див. знімок для  $\alpha = 0.2$ ). Подальше збільшення значення  $\alpha$  дозволяє зменшити лінійні розміри цих отворів і при  $\alpha > \alpha_2$  адсорбат з високою концентрацією однорідно покриває шар.

Абсолютно протилежна ситуація відбувається із збільшенням напружено-

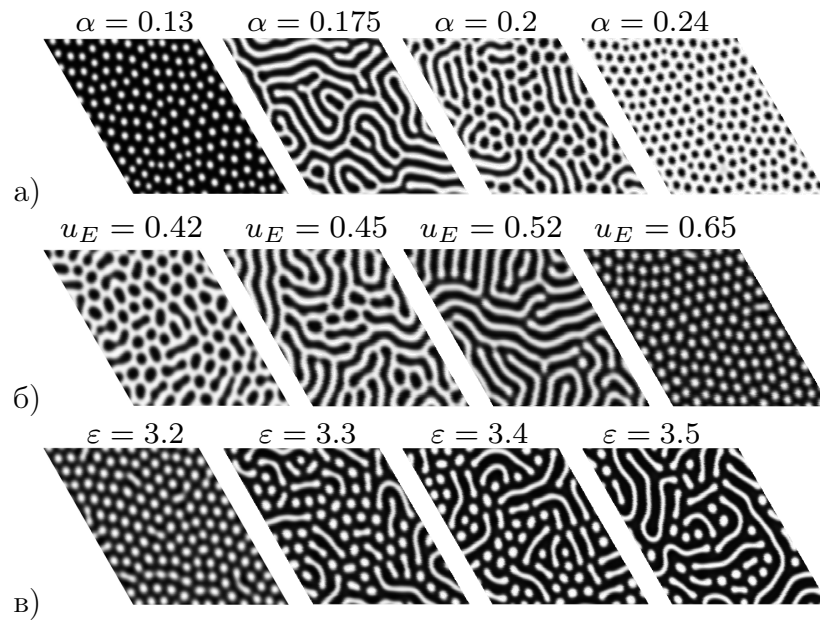


Рисунок 1.11 — Типові ілюстрації морфології поверхні у квазі-стаціонарному режимі, отримані при: а)  $\epsilon = 3.3$ ,  $u_E = 0.6$ ; б)  $\epsilon = 3.2$ ,  $\alpha = 0.15$ ; в)  $\alpha = 0.15$ ,  $u_E = 0.6$

сті підведеного до підкладки електричного поля  $u_E$  (див. рис. 1.11б). Тут зростання  $u_E > u_{E1}$  забезпечує перетворення морфології шару з відокремленими отворами всередині адсорбату матриці (знімок для  $u_E = 0.42$ ) через лабиринтоподібну структуру при  $u_E \simeq u_{Em}$  (знімок для  $u_E = 0.52$ ) до відокремлених структур адсорбату (знімок для  $u_E = 0.65$ ).

Збільшення енергії взаємодії адсорбату  $\epsilon$  забезпечує сильну взаємодію сферичних островів адсорбату і, як наслідок, формування витягнутих структур (див. зміни в морфології шару із зростанням  $\epsilon$  на рис. 1.11в).

З метою встановлення впливу основних контролюючих параметрів системи на лінійний розмір поверхневих структур ми використаємо метод перколяції та визначимо область  $s_i$  кожного кластера адсорбату/отвору в одиницях  $L_D^2$ . Далі, розглядаючи кожен кластер як диск з тією ж площею, ми визначаємо лінійний розмір (радіус)  $R = \sqrt{(s_i/\pi)}$  в одиницях  $L_D$ . На рис. 1.12 показано еволюцію середнього розміру структур адсорбату/отворів  $\langle R \rangle$ , усередненого за усіма структурами, при різних значеннях контролюючих параметрів. З рисунку випливає, що після інкубаційного періоду (стадії формування та росту) середній розмір просторових структур (як структур адсорбату, так і отворів) досягає стаціонарного значення. Шляхом порівняння суцільної та штрихової кривих,

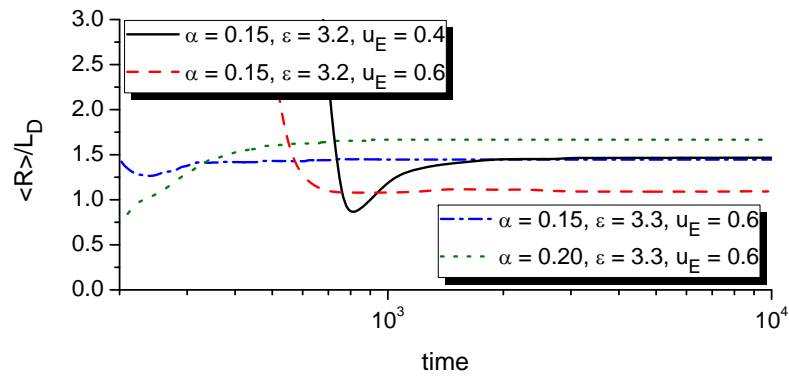


Рисунок 1.12 — Еволюція середнього розміру структур адсорбату/отворів  $\langle R \rangle$ , усередненого за усіма структурами, при різних значеннях контролюючих параметрів

отриманих при різних значеннях напруженості електричного поля  $u_E$ , маємо, що лінійний розмір островів адсорбату є меншим за лінійний розмір отворів в матриці адсорбату. Збільшення енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon$  (пор. штрихову та пунктирну криві) приводить до збільшення стаціонарного значення середнього лінійного розміру островів адсорбату внаслідок формування видовжених поверхневих структур. З ростом коефіцієнта адсорбції  $\alpha$  внаслідок структурного перетворення в морфології поверхні, отвори характеризуються більшими розмірами, порівняно зі структурами адсорбату.

На рис. 1.13 наведено залежності кількості  $N_{a,v}$  відокремлених структур, що реалізуються на поверхні шару, та їхнього середнього розміру  $\langle R_{a,v} \rangle$  від коефіцієнту адсорбції  $\alpha$  (рис. 1.13а), напруженості електричного поля  $u_E$  (рис. 1.13б) та енергії взаємодії  $\varepsilon$  (рис. 1.13в). Спочатку детально обговоримо залежності  $N_{a,v}(\alpha)$  та  $\langle R_{a,v} \rangle(\alpha)$ . Починаючи зі значення  $\alpha = \alpha_1$  лінійний розмір відокремлених структур адсорбату  $\langle R_a \rangle$  зростає до  $\alpha < \alpha_a$ . Їх кількість  $N_a$  залежить від коефіцієнта адсорбції  $\alpha$  немонотонним чином. При малих  $\alpha > \alpha_1$  кількість відокремлених структур адсорбату зростає. У випадку  $\alpha > \alpha_c$  реалізуються витягнуті структури адсорбату разом зі сферичними, а загальна кількість структур  $N_a$  спадає з ростом  $\alpha$ . В інтервалі  $\alpha \in [\alpha_a, \alpha_v]$  маємо лабіринтоподібні структури (див. знімок для  $\alpha = 0.175$  на рис. 1.11а). Відокремлені сферичні та подовжені отвори в матриці адсорбату починають організуватися при  $\alpha > \alpha_v$  (див. знімок для  $\alpha = 0.2$  на рис. 1.11а) і подальше збільшення  $\alpha < \alpha_2$  забезпечує формування відокремлених сферичних отворів. Їх кількість

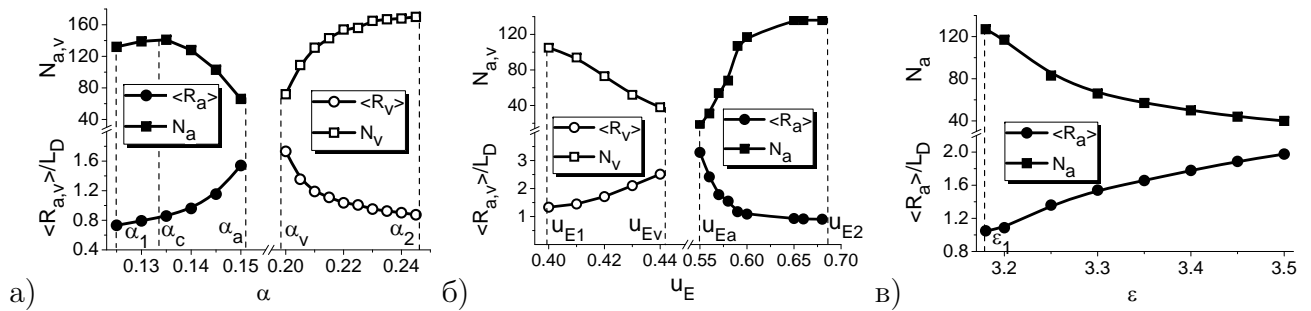


Рисунок 1.13 — Залежність середнього лінійного розміру структур адсорбату (заповнені кружки)  $\langle R_a \rangle$  й отворів (порожні кружки)  $\langle R_v \rangle$  та кількість структур адсорбату (заповнені квадрати)  $N_a$  й отворів (порожні квадрати)  $N_v$  при: а)  $\epsilon = 3.3$ ,  $u_E = 0.6$ ; б)  $\epsilon = 3.2$ ,  $\alpha = 0.15$ ; в)  $\alpha = 0.15$ ,  $u_E = 0.6$

$N_v$  зростає, а лінійний розмір  $\langle R_v \rangle$  зменшується з ростом  $\alpha$ .

Зі збільшенням напруженості електричного поля біля підкладки реалізується протилежна ситуація. Починаючи з  $u_E = u_{E1}$ , кількість відокремлених отворів в матриці адсорбату зменшується зі збільшенням їх лінійного розміру (див. рис. 1.13б та знімки для  $u_E = 0.42$  та  $u_E = 0.45$  на рис. 1.11б). В інтервалі  $u_E \in (u_{Ev}, u_{Ea})$  реалізуються лабіринтні структури. При  $u_E > u_{Ea}$  збільшення напруженості електричного поля  $u_E < u_{E2}$  забезпечує зростання кількості відокремлених структур адсорбату невеликого розміру. При збільшенні енергії взаємодії адсорбату  $\epsilon$  (зменшення температури зростаючої поверхні), починаючи з  $\epsilon_1$ , відокремлені структури адсорбату стають видовженими та їх кількість зменшується (див. рис. 1.13в).

#### 1.4 Вплив флуктуацій потоку адсорбату на динаміку структуривання тонких плівок

У цьому розділі нами буде досліджено вплив флуктуацій потоку адсорбату на динаміку та властивості зростаючої поверхні. У рамках аналізу системи на стійкість буде виявлено вплив інтенсивності уведених флуктуацій на критичні значення керуючих параметрів системи, а саме, коефіцієнту адсорбції, енергії взаємодії адсорбату та інтенсивності анізотропії вертикальних переходів адатомів між шарами, викликаної дією підведеного до підкладки електричного поля,

коли в системі можливим стає утворення стаціонарних просторових структур. У рамках процедури числового моделювання буде досліджено динаміку середньої концентрації адсорбату та дисперсії поля концентрації та визначено вплив інтенсивності флуктуацій потоку адсорбату на час, необхідний для упорядкування, морфологію зростаючої поверхні, тип поверхневих структур, середній період розташування структур адсорбату, їх середній розмір та розподіл структур адсорбату/отворів за розмірами.

З метою встановлення умов за яких у досліджуваній системі плазма-конденсат можливим буде формування стаціонарних поверхневих структур у даному розділі буде проведено лінійний аналіз на стійкість. Він дозволить встановити області значень основних керуючих параметрів системи, коли формуватимуться просторові структури. У роботі [54] було показано, що у границі малих значень сили анізотропії у переходах адатомів між шарами ( $u \rightarrow 0$ ), що відповідає слабкому електричному полю біля підкладки з малою напруженістю адсорбат рівномірно покриватиме шар за шаром. що приводить до унеможливлення формування пірамідальних структур. У такому разі реалізується процес наплення. коли тонка плівка зростає шар за шаром [54]. У цьому розділі нами буде зосереджено увагу на встановленні впливу флуктуацій потоку адсорбату  $\Sigma$  на стійкість стаціонарного однорідного стану  $x_0$  до неоднорідних збурень. Як слідує з рівняння (1.11) уведені у розгляд флуктуації потоку адсорбату не змінюють однорідний стаціонарний стан  $x_{st}$ , який може бути знайдено з рівняння  $f(x_0) = 0$ . Показник стійкості  $\lambda(\kappa)$  набуває вигляду:

$$\lambda(\kappa) = d_x f(x)|_{x=x_{st}} - \kappa^2 \left[ 1 - 2\varepsilon\gamma(x_{st})(1 - \rho^2\kappa^2) - \frac{\Sigma}{2}\varepsilon\gamma(x_{st}) \right]. \quad (1.12)$$

Аналізуючи показник стійкості  $\lambda(\kappa)$  при варіювання основних керуючих параметрів системи та інтенсивності флуктуацій потоку адсорбату, було отримано діаграми стійкості, які наведено на рисунку 1.14.

З отриманих результатів випливає, що збільшення інтенсивності флуктуацій потоку адсорбату приводить до переходу системи з області формування стаціонарних відокремлених просторових структур “структурування” до обла-

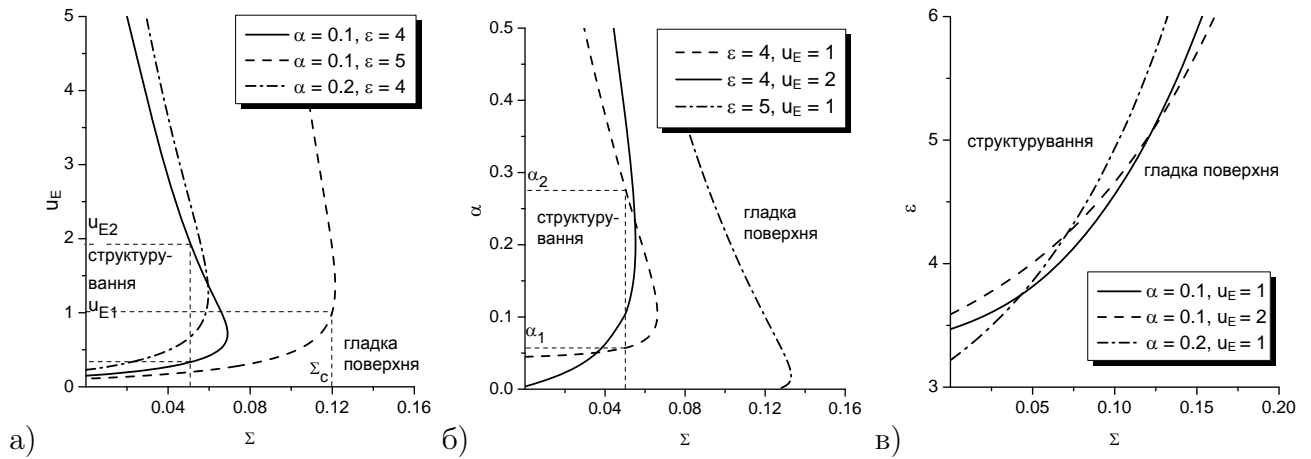


Рисунок 1.14 — Діаграми стійкості: в області “структурування” формуються відокремлені поверхневі структури; в області “гладка поверхня” адсорбат однорідно покриває шар

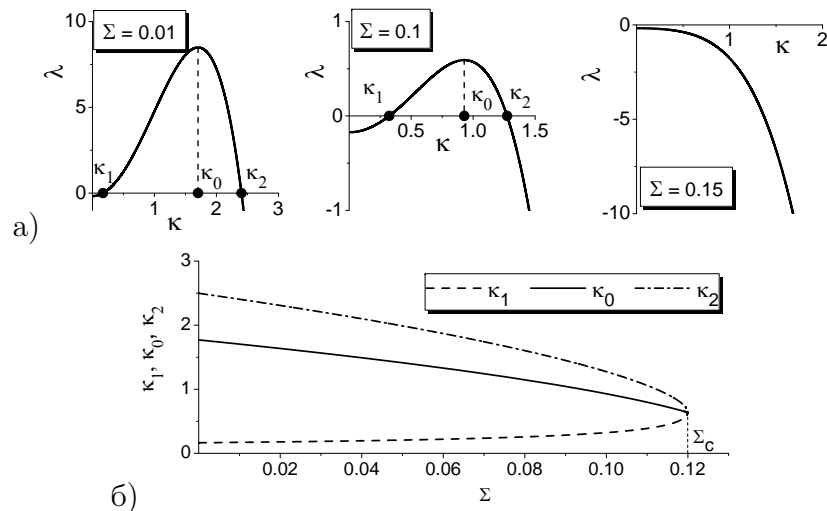


Рисунок 1.15 — Залежності а) показника стійкості  $\lambda$  від перенормованого хвильового числа  $\kappa$  при різних значеннях інтенсивності флуктуацій  $\Sigma$ ; б) хвильових чисел  $\kappa_1$ ,  $\kappa_0$ ,  $\kappa_2$  від інтенсивності флуктуацій  $\Sigma$ . Інші параметри:  $\varepsilon = 5$ ,  $u = 1$ ,  $\alpha = 0.1$

сті однорідного розподілу адсорбату на шарі “гладка поверхня” при критичному значенні інтенсивності флуктуацій  $\Sigma_c$  (див. рис. 1.14а). При фіксованих значеннях інтенсивності шуму потоку адсорбату  $\Sigma$  збільшення сили анізотропії  $u_E$  або коефіцієнту адсорбції  $\alpha$  приводить до реверсивного процесу упорядкування поверхні, що супроводжується формуванням стаціонарних просторових структур (див. рис. 1.14а,б, відповідно). При малих значеннях сили анізотропії ( $u_E < u_{E1}$ ) у квазі-рівноважній системі формування стаціонарних структур є неможливим; тоді як за умови сильної анізотропії в переходах адатомів між



сусідніми шарами (при  $u_E > u_{E2}$ ) інтенсивні переходи адатомів з нижніх шарів до верхніх приводять до зменшення концентрації адсорбату на досліджуваному шарі багатошарової системи. У такому разі критичне пересичення, необхідне для формування поверхневих структур адсорбату не досягається. При  $\alpha < \alpha_1$  слабкий тиск в камері не здатен продукувати необхідну концентрацію адсорбату на досліджуваному шарі для кластеризації адатомів з формуванням відокремлених структур. У такому разі адсорбат десорбується з шару або з малою концентрацією рівномірно покриває підкладку. При великих значеннях коефіцієнту адсорбції  $\alpha > \alpha_2$  реалізується процес росту поверхні шар за шаром без можливості структурування адсорбату. Збільшення сили взаємодії адсорбату  $\varepsilon$ , що еквівалентно зменшенню температури ростової поверхні, приводить до розширення області переметрів системи. коли можливим є формування стаціонарних відокремлених просторових структурна поверхні досліджуваного шару (див. рис. 1.14с). Детальний опис впливу основних параметрів детерміністичної системи плазма конденсат на діаграму стійкості подано в роботі [54].

Типові залежності показника стійкості  $\lambda(\kappa)$  при різних значеннях інтенсивності флуктуацій потоку адсорбату наведено на рисунку 1.15а. З рисунка випливає, що з ростом інтенсивності флуктуацій потоку адсорбату (зліва направо) вся залежність  $\lambda(\kappa)$  зміщується в бік негативних значень, означаючи перехід від структурування до однорідного стану. Залежності перенормованих хвильових чисел  $\kappa_1$ ,  $\kappa_0$  та  $\kappa_2$  від інтенсивності шуму  $\Sigma$  при інших фіксованих параметрах системи подано на рис. 1.15б. Спадаюча залежність періоду просторових збурень  $\kappa_0$  означає збільшення середньої відстані між відокремленими поверхневими структурами. Принциповим є той факт, що при  $\Sigma = \Sigma_c$  маємо  $\kappa_0 \neq 0$ . Це означає, що у границі  $\Sigma \rightarrow \Sigma_c - 0$  поверхня шару характеризується скінченною кількістю поверхневих структур з фіксованою середньою відстанню між ними.

Проведений аналіз системи на стійкість дозволяє прогнозувати можливість формування просторових структур у стаціонарному режимі. Для проведення детального аналізу впливу флуктуацій потоку адсорбату на динаміку структурування та можливість контролювання морфологією поверхні, типом та

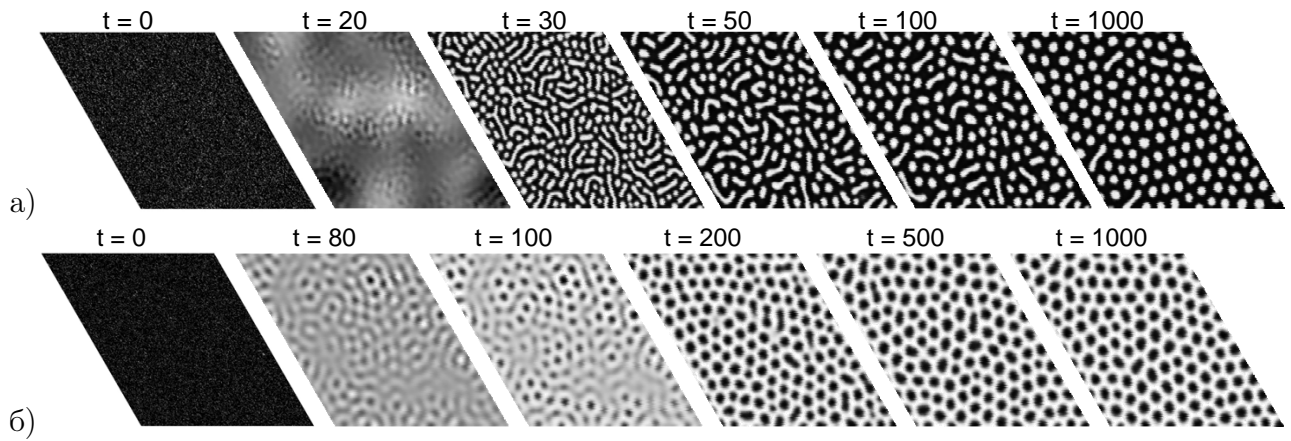


Рисунок 1.16 — Знімки еволюції системи при (а)  $\Sigma = 0.05$  та (б)  $\Sigma = 0.115$

розміром поверхневих структур у досліджуваній стохастичній системі плазма-конденсат у наступному розділі нами буде проведено числові симуляції.

При проведенні числового моделювання далі зафіксуємо основні параметри системи, а саме,  $\beta = 0.1$ ,  $u_E = 1.0$ ,  $\varepsilon = 5.0$ ,  $\alpha = 0.1$  та будемо проводити симуляції за схемою, описаною у попередньому розділі. При розв'язанні рівняння Ленжевена з мультиплікативним шумом, що інтерпритується у сенсі Стратоновича, будемо використовувати алгоритм Мільштейна [56]. Джерело білого шуму будемо генерувати з використанням методу Бокса-Мюллера, що дозволяє генерувати випадкові числа з Гаусовим розподілом [57]. На рис. 1.16а наведено ілюстрації еволюції системи при  $\Sigma = 0.05$ . При фіксованих значеннях параметрів системи та малих інтенсивностях флуктуацій впродовж часу конденсації формуються відокремлені структури адсорбату. При підвищених значеннях інтенсивності флуктуацій потоку адсорбату  $\Sigma = 0.115$  на даному шарі з часом формуються відокремлені отвори в матриці адсорбату (див. рис. 1.16б). Таким чином, маємо, що зі збільшенням інтенсивності флуктуацій потоку адсорбату реалізується морфологічний перехід від відокремлених структур адсорбату до відокремлених отворів в матриці адсорбату.

З метою проведення детального вивчення динаміки системи та встановлення впливу флуктуацій інтенсивності  $\Sigma$  далі розглянемо еволюцію середньої концентрації  $\langle x \rangle$  та дисперсії  $\langle (\delta x)^2 \rangle = \langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2$ , наведену на рис. 1.17а при різних значеннях інтенсивності шуму  $\Sigma$ . З отриманих результатів випливає, що

на початкових стадіях еволюції системи флуктуації не впливають на зміну середньої концентрації адсорбату  $\langle x \rangle$ , яка зростає з часом. У момент часу  $t = t_1$  настає насичення і процеси взаємодії адсорбату, відіграючи домінуючу роль, приводять до формування відокремлених структур (див. знімки при  $t = 20$  на рис. 1.16а та при  $t = 80$  на рис. 1.16б). Тут  $\langle x \rangle$  набуває максимального значення та з подальшим збільшенням часу осадження спадає до ненульового стаціонарного значення  $\langle x_{st} \rangle$ , яке залежить від інтенсивності флуктуацій  $\Sigma$ . Зменшення середньої концентрації адсорбату пов'язано з проходженням процесів взаємодії адсорбату: малі структури з лінійним розміром, меншим за певний критичний розмір, зникають; тоді як великі структури зростають, доки їх лінійний розмір не досягне стаціонарного значення, яку визначається параметрами системи. Дисперсія  $\langle (\delta x)^2 \rangle$ , відіграючи роль параметра порядку, набуває нульових значень при  $t < t_1$ , говорячи про однорідність розподілу адсорбату на шарі. При  $t = t_1$  величина  $\langle (\delta x)^2 \rangle$  починає зростати, сигналізуючи про проходження процесів упорядкування. На великих часових інтервалах  $\langle (\delta x)^2 \rangle$  досягає стаціонарного ненульового значення  $\langle (\delta x_{st})^2 \rangle$ , залежного від інтенсивності флуктуацій  $\Sigma$ , означаючи формування стаціонарних просторових структур. Момент часу  $t_1$ , коли починаються процеси упорядкування, залежить від інтенсивності шуму  $\Sigma$ , що представлено на вставці до рис. 1.17а. Видно, що врахування флуктуацій малої інтенсивності  $\Sigma = 0.01$  приводить до прискорення процесів упорядкування (зменшення значень  $t_1$ ) з дещо меншим значенням середньої концентрації адсорбату, порівняно з детерміністичним випадком при  $\Sigma = 0$  (див. вставку та суцільні криві 2 та 1). Подальше збільшення інтенсивності флуктуацій приводить до уповільнення динаміки формування структур (зростання  $t_1(\Sigma)$ );  $\langle x_{st} \rangle$  зростає (суцільна крива 3). Стаціонарне значення параметра порядку  $\langle (\delta x_{st})^2 \rangle$  зменшується з ростом  $\Sigma$  (див. штрихові криві на рис. 1.17а).

На рис. 1.17б наведено залежності стаціонарних значень середньої концентрації адсорбату  $\langle x_{st} \rangle$  та параметра порядку  $\langle (\delta x_{st})^2 \rangle$  від інтенсивності флуктуацій  $\Sigma$ . видно, що з ростом  $\Sigma$  величина  $\langle x_{st} \rangle$  спадає, досягає мінімального значення при  $\Sigma = \Sigma_s$  та потім зростає доки  $\Sigma = \Sigma_c$  (див. заповнені квадрати на рис. 1.17б). Величина  $\langle (\delta x_{st})^2 \rangle$  спадає з  $\Sigma$  та приймає нульових значень

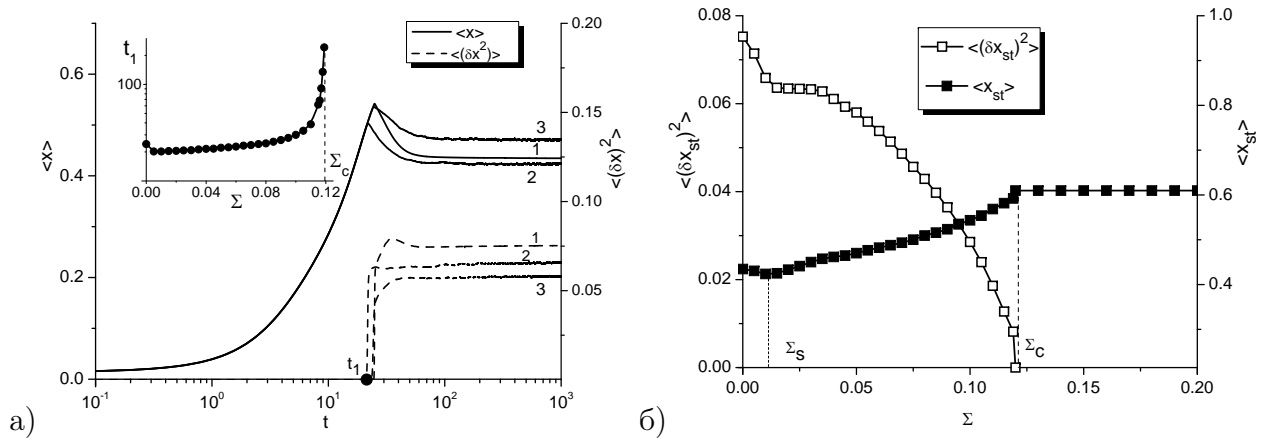


Рисунок 1.17 — (а) Еволюція середньої концентрації адсорбату  $\langle x \rangle$  та параметра порядку  $\langle (\delta x)^2 \rangle$  при: 1)  $\Sigma = 0$ , 2)  $\Sigma = 0.01$ , 3)  $\Sigma = 0.1$ . На вставці наведено залежність моменту часу  $t_1$ , коли починаються процеси структурування, від інтенсивності флуктуацій  $\Sigma$ . (б)

Залежності середніх стаціонарних значень концентрації адсорбату  $\langle x_{st} \rangle$  та параметра порядку  $\langle (\delta x_{st})^2 \rangle$  від інтенсивності шуму  $\Sigma$

при  $\Sigma \geq \Sigma_c$  (пусти квадрати на рис. 1.17б). Це означає, що у випадку  $\Sigma > \Sigma_c$  формування стаціонарних просторових структур не можливе; тут збільшення інтенсивності шуму не впливає на стаціонарну середню концентрацію адсорбату на шарі (заповнені квадрати на рис. 1.17б при  $\Sigma > \Sigma_c$ ). Необхідно відзначити, що критичне значення  $\Sigma_c \simeq 0.12$ , отримане в рамках аналізу на стійкість (див. рис. 1.14а та рис. 1.15) добре узгоджується зі значенням, отриманим в рамках процедури числового моделювання при фіксованих значеннях інших параметрів системи.

Дослідження зміни морфології поверхні при збільшенні інтенсивності флуктуацій потоку адсорбату може бути проведено з використанням статистичного аналізу, розглядаючи стаціонарну дво-точкову кореляційну функцію  $C(r) = \langle x(r)x(0) \rangle$ . Вона може бути представлена у вигляді:  $C(r) = Ae^{-r/R_c} \cos(2\pi r/R_0 + \phi)$ , де  $R_c$  та  $R_0$  визначають кореляційний радіус та середню відстань між структурами (період просторових модуляцій), відповідно. Величина  $R_0$  може бути використана для встановлення критичного значення інтенсивності шуму, за якого відбувається морфологічний перехід [47]. Залежність  $R_0$  в одиницях дифузійної довжини  $L_d$  від інтенсивності шуму  $\Sigma$  наведено на рис. 1.18а з типовою залежністю кореляційної функції  $C(r)$  на вставці. Видно, що величина  $R_0$  зро-

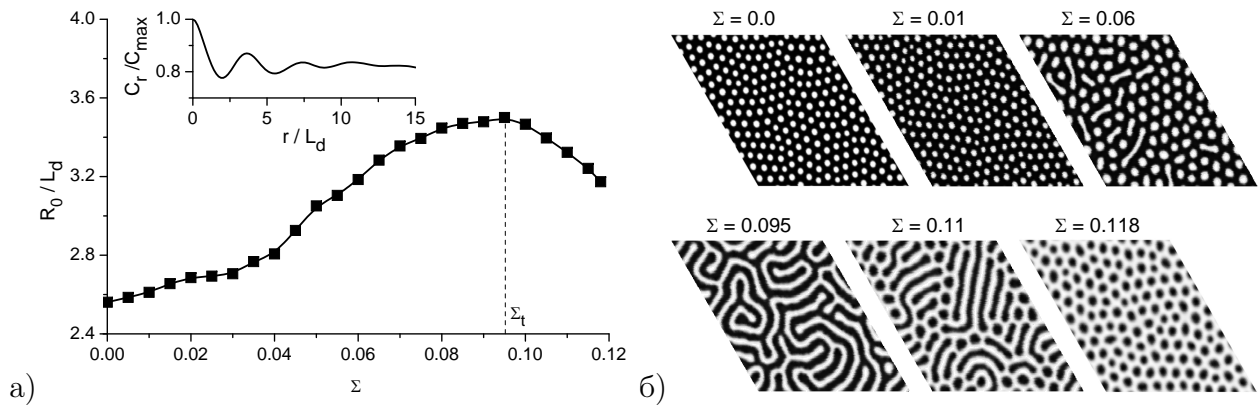


Рисунок 1.18 — (а) Залежність середньої відстані між відокремленими структурами  $\langle R_0 \rangle$  від інтенсивності флуктуацій потоку адсорбату  $\Sigma$ . (б) Знімки поверхні шару у квазі-стаціонарному режимі при різних значеннях інтенсивності шуму  $\Sigma$

стає при  $\Sigma \in (0, \Sigma_t)$  і на поверхні формуються відокремлені структури адсорбату. Збільшення  $\Sigma$  приводить до формування видовжених структур адсорбату разом зі сферичними структурами (див. знімки при  $\Sigma = 0, 0.01$  та  $0.06$  на рис. 1.18б). В околі  $\Sigma_t$  середня відстань між структурами  $R_0$  набуває максимального значення і на поверхні реалізується лабіринтна структура перколюючих кластерів адсорбату (див. знімок при  $\Sigma = 0.095$  на рис. 1.18б). З подальшим ростом інтенсивності шуму в інтервалі  $\Sigma \in (\Sigma_t, \Sigma_c)$  величина  $R_0$  зменшується, що супроводжується формування відокремлених отворів в матриці адсорбату. При підвищених інтенсивностях  $\Sigma < \Sigma_c$  сферичні отвори характеризуються однаковим розміром (див. знімок при  $\Sigma = 0.11$  на рис. 1.18б).

З метою проведення аналізу впливу інтенсивності флуктуацій на лінійний розмір структур будемо використовувати метод порколюючого кластеру та розрахуємо лінійний розмір (радіус) сферичних структур в одиницях дифузійної довжини  $L_d$ . У цій процедурі нами не враховуватимуться видовжені структури. Часові залежності середнього лінійного розміру відокремлених структур адсорбату та сферичних отворів  $\langle R \rangle$  при різних значеннях інтенсивності флуктуацій  $\Sigma$  представлено на рис. 1.19а,б, відповідно, у логарифмічному масштабі. Величина  $\langle R \rangle$  може бути асоційована із середнім  $(1/2N) \sum_i^M L_i$ , розрахованим на  $n$ -ому шарі, сума береться за всіма  $M$  структурами (див. рис. 1.1). Спочатку розглянемо випадок малих значень інтенсивності флуктуацій, коли реалізую-

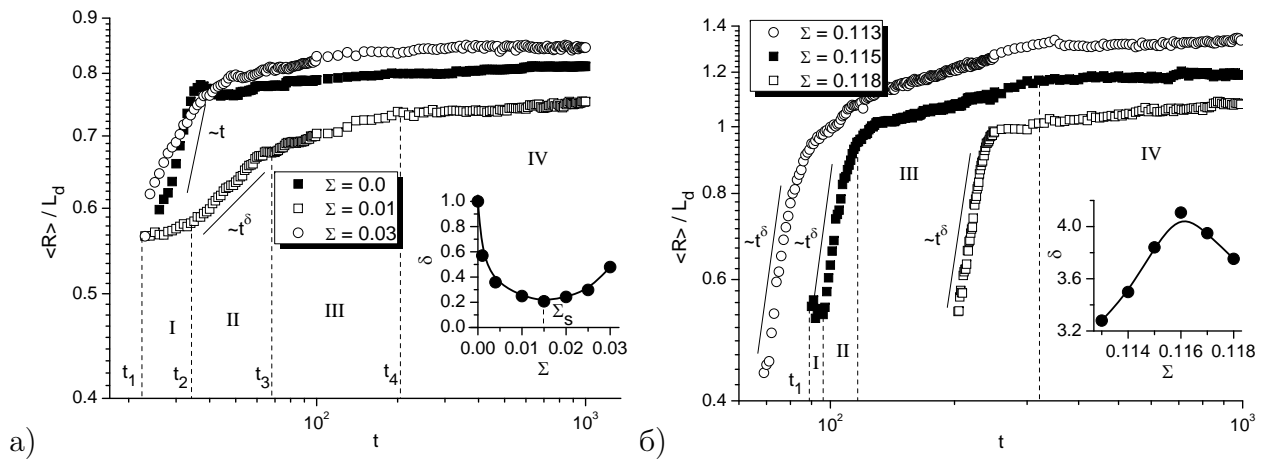


Рисунок 1.19 — Еволюція середнього лінійного розміру  $\langle R \rangle$  структур адсорбату (а) та отворів (б) при різних значеннях інтенсивності шуму. Вставки на рисунках ілюструють залежності показника росту  $\delta$  від  $\Sigma$

ться відокремлені структури адсорбату, що наведено на рис. 1.19а. Тут можна виділити чотири різних динамічних режими еволюції середнього розміру структур адсорбату (див. криву з пустими квадратами при  $\Sigma = 0.01$ ). Починаючи з моменту часу  $t = t_1$  реалізується стадія формування відокремлених структур (стадія I). Стадія росту (стадія II) починається в момент часу  $t = t_2$  і характеризується степеневою асимптотикою  $t^\delta$ . При  $t = t_3$  її змінює стадія огрублення (стадія III), коли змінюється як форма, так і розмір структур адсорбату внаслідок їх взаємодії між собою. На пізніх часах, при  $t > t_4$ , настає квазі-стаціонарний режим, коли середній розмір структур адсорбату суттєво не змінюється з часом (стадія IV). На вставці до рис. 1.19а наведено залежність показника росту  $\delta$  від інтенсивності шуму  $\Sigma$  на стадії II. Показано, що в чисто детерміністичній системі (при  $\Sigma = 0$ ) реалізується нормальний закон росту з  $\delta = 1$  (див. заповнені квадрати на рис. 1.19а). Урахування флуктуацій приводить до уповільнення динаміки росту середнього розміру:  $\delta$  спадає з  $\Sigma$ , досягає мінімального значення при  $\Sigma = \Sigma_s$  і потім починає зростати з  $\Sigma$ . На рис. 1.19б аналогічні залежності представлено при підвищених значеннях інтенсивності шуму  $\Sigma$ , коли формуються відокремлені структури отворів в матриці адсорбату. Тут середній розмір отворів зростає на стадії II з асимптотикою  $t^\delta$  (крива з заповненими квадратами при  $\Sigma = 0.115$  на рис. 1.19б).

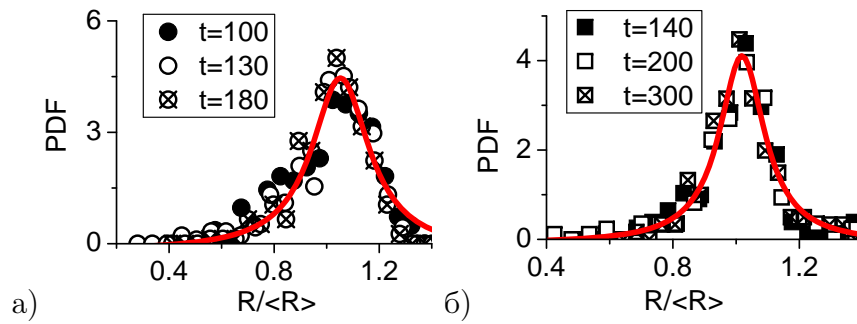


Рисунок 1.20 — Розподіли структур адсорбату та отворів за розмірами  $R/\langle R \rangle$  на стадії росту в різні моменти часу при (а)  $\Sigma = 0.01$  та (б)  $\Sigma = 0.115$ , відповідно

Розподіли структур адсорбату та отворів за розмірами на стадії росту в різні моменти часу наведені на рис. 1.20а,б при  $\Sigma = 0.01$  та  $\Sigma = 0.115$ , відповідно. Отримані розподіли є універсальними, (не змінюються з часом), а отримані числові дані добре апроксимуються розподілом Лоренца (суцільні криві).

Далі детально проаналізуємо вплив інтенсивності шуму  $\Sigma$  на кількість  $N$  поверхневих структур та їх лінійний розмір  $\langle R \rangle$  у квазі-стаціонарному випадку. Залежності  $\langle R \rangle(\Sigma)$  та  $N(\Sigma)$  подано на рис. 1.21а,б, відповідно. На даних залежностях можна виділити три області, позначені I, II та III при  $\Sigma \in [0, \Sigma_c)$  (при  $\Sigma > \Sigma_c$  стаціонарні структури не формуються). В області I при малих значеннях інтенсивності шуму формуються відокремлені структури адсорбату (див. знімки при  $\Sigma = 0$  та  $0.01$  рис. 1.18б). Тут при  $\Sigma < \Sigma_s$  флуктуації приводять до зменшення лінійного розміру структур адсорбату та збільшення їх кількості. При  $\Sigma_s < \Sigma < \Sigma_a$  шум приводить до: 1) зменшення кількості островів адсорбату; 2) збільшення їх середнього розміру; 3) прискорення в процесах росту середнього розміру структур адсорбату (див. вставку на рис. 1.19а) та 4) формування видовжених структур адсорбату (пор. знімки при  $\Sigma = 0.01$  та  $\Sigma = 0.06$  на рис. 1.18б).

В області II, коли  $\Sigma_a < \Sigma < \Sigma_v$ , формується лабіринтна структура, що характеризується наявністю перколюючих кластерів адсорбату (див. знімок при  $\Sigma = 0.095$  на рис. 1.18б). З подальшим ростом інтенсивності флуктуацій  $\Sigma$  в області III, реалізуються відокремлені отвори в матриці адсорбату (див. знімок при  $\Sigma = 0.11$  на рис. 1.18б). Тут збільшення інтенсивності шуму приводить до

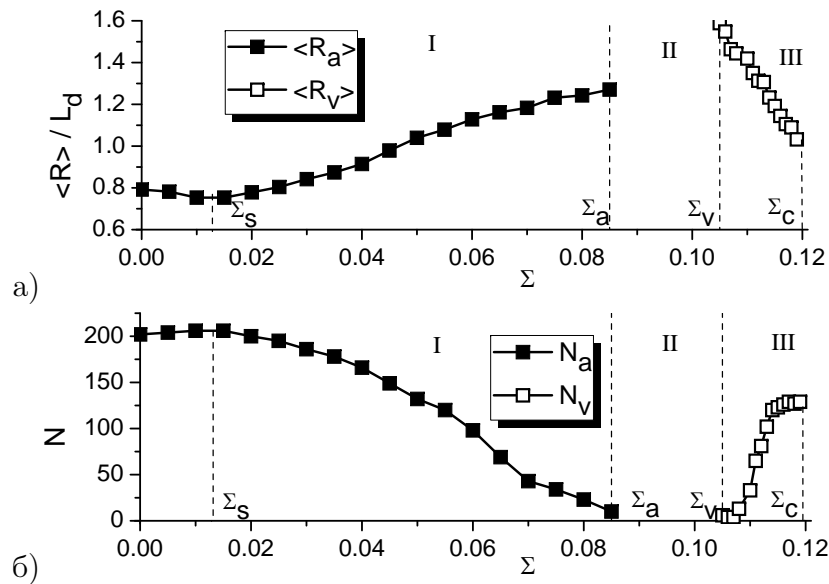


Рисунок 1.21 — Залежності (а) середнього лінійного розміру структур адсорбату/отворів та (б) кількості структур від інтенсивності шуму  $\Sigma$

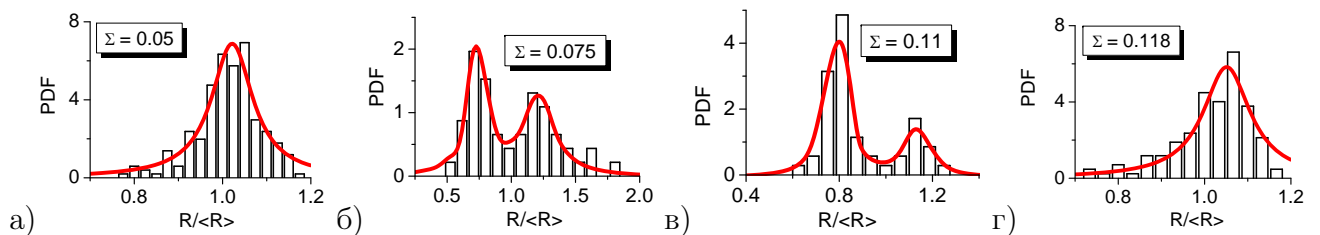


Рисунок 1.22 — Розподіли структур за розмірами  $R/\langle R \rangle$  у квазі-стаціонарному режимі при різних значеннях інтенсивності шуму  $\Sigma$

формування сферичних отворів та зменшення їх лінійного розміру (пор. знімки при  $\Sigma = 0.11$  та при  $\Sigma = 0.118$  на рис. 1.18б).

Наприкінці, проаналізуємо розподіли поверхневих структур за розмірами у квазі-стаціонарному режимі при різних значеннях інтенсивності флуктуацій  $\Sigma$ , наведені на рис. 1.22. Видно, що при малому значення інтенсивності шуму (див. рис. 1.22а), коли формуються відокремлені структури адсорбату, відповідний розподіл добре узгоджується з розподілом Лоренця. При  $\Sigma = 0.075$ , коли реалізуються як сферичні острови адсорбату так і видовжені структури, відповідний розподіл є бімодальним та добре апроксимується змішаним розподілом Лоренця, який представляється сумою двох Лоренціанів (див. рис. 1.22б). Аналогічна ситуація реалізується і при  $\Sigma = 0.11$ , коли формуються



сферичні та видовжені отвори в матриці адсорбату (див. рис. 1.22в). При великих значеннях інтенсивності флуктуацій розподіл отворів за розмірами є унімодальним та дається розподілом Лоренця (див. рис. 1.22г). Аналогічні бімодальні розподіли експериментально спостерігалися при адсорбції та реакції  $Rh(CO)_2(acac)$  на  $Al_2O_3/Ni_3Al(111)$  [58] та при формування нанокластерів Ag на  $TiO_2(110)$  [59].

### 1.5 Оцінка отриманих даних числового моделювання

Проведені числові симуляції показали, що змінюючи: а) коефіцієнт адсорбції, що визначається тиском всередині камери; б) енергію взаємодії адсорбату, яка задається оберненою температурою зростаючої поверхні; в) силу анізотропії в переходах адатомів між сусідніми шарами, що пропорційна до напруженості підведеного до підкладки електричного поля; та г) інтенсивність флуктуацій поверхневого потоку адсорбату можна контролювати морфологію зростаючою поверхні, тип та розмір поверхневих структур. При цьому середній розмір структур розраховувався в одиницях дифузійної довжини. Для проведення оцінки отриманих результатів щодо середнього лінійного розміру відокремлених сферичних структур адсорбату та відокремлених отворів в матриці адсорбату, отриманих при різних значеннях параметрів системи, скористаємося формулою для визначення розмірного значення дифузійної довжини  $L_D = \sqrt{k_{\leftrightarrow}/k_d^0} = a^2 \exp([E_d - E_D]/T)$ . Далі використаємо дані експериментальних досліджень щодо адсорбції Ge на підкладку  $SiO_2$  [60]: енергія активації дифузії  $E_D = 0.24$  еВ та енергія десорбції  $E_d = 0.44$  еВ. Для реальних значень температури поверхні всередині камери, а саме при  $T = 773$  К для дифузійної довжини отримуємо  $L_D \simeq 50$  нм. Таким чином, отримані у процедурі числового моделювання сферичні структури адсорбату характеризуються розмірами  $\langle R_a \rangle \in (35 \div 150)$  нм в залежності від значень основних параметрів системи; тоді як відокремлені отвори в матриці адсорбату мають лінійні розміри в інтервалі  $\langle R_v \rangle \in (40 \div 125)$  нм. Ці результати добре узгоджуються з відомими експериментальними даними щодо лінійного розміру поверхневих структур при конденсації [60–63].

## ВИСНОВКИ

У даній роботі проведено теоретичний опис та моделювання процесів формування стаціонарних просторових відокремлених структур на поверхнях тонких плівок при осадженні в системах плазма-конденсат. Було побудовано узагальнену одно-шарову модель для опису процесів формування пірамідальних структур при багато-шаровій конденсації з урахуванням процесів адсорбції, десорбції, поверхневої та вертикальної дифузії, а також анізотропії в переходах адатомів між сусідніми шарами, з переважаючими переходами від нижніх шарів до верхніх, викликані дією підведеного до підкладки електричного поля. Крім того, нами розглянуто випадок періодичних та стохастичних змін сили такої анізотропії, та флуктуацій поперечного потоку адсорбату.

Розглядаючи випадок однорідної системи проведено детальне дослідження переходів системи із стану з низькою густиною адсорбату до стану з високою густиною, коли досягається необхідне пересичення для подальшої самоорганізації адсорбату з формуванням поверхневих структур. Тут основну увагу зосереджено на дослідженні зміни середнього часу такого переходу при варіюванні амплітуди та частоти періодичної зміни, а також інтенсивності флуктуацій випадкової зміни сили анізотропії вертикальних переходів адатомів між шарами, що пропорційна до напруженості електричного поля біля підкладки. Показано, що у випадку слабких флуктуацій середній час переходів зменшується з ростом амплітуди періодичних змін напруженості електричного поля та оптимізується з частотою цих періодичних коливань. Встановлено, що збільшення інтенсивності флуктуацій напруженості підведеного електричного поля при малих значеннях затримує динаміку цих переходів внаслідок ефектів асинхронізації періодичної та стохастичної компоненти. Зростання інтенсивності флуктуацій напруженості електричного поля при великих інтенсивностях приводить до зменшення часу переходів від стану з малою густиною до стану з високою густиною.

Досліджуючи просторово-розподілену детерміністичну систему за умови незмінності у часі напруженості електричного поля встановлено області змі-

ни основних керуючих параметрів системи за яких можливою стає реалізація стійких просторових структур. Виявлено можливість контролювання динамікою процесів структуроутворення, морфологією зростаючої поверхні, типом та розміром поверхневих структур, змінюючи тиск всередині камери, температуру та напруженість підведеного до підкладки електричного поля. Встановлено, що збільшення тиску всередині камери приводить до: а) збільшення концентрації адсорбату в системі; б) прискорення процесів формування відокремлених структур адсорбату; в) росту лінійного розміру структур адсорбату; г) формування видовжених структур; д) уповільнення динаміки формування відокремлених отворів в матриці адсорбату та зменшення їх лінійного розміру. При збільшенні напруженості електричного поля реалізується зворотна картина морфологічної та структурної перебудови поверхні з переходом від відокремлених структур отворів в матриці адсорбату через лабіринтну структуру перколюючих кластерів адсорбату до відокремлених сферичних структур адсорбату. При фіксованих значеннях тиску всередині камери та напруженості електричного поля зменшення температури ростової поверхні (або збільшення енергії взаємодії адсорбату) приводить до формування видовжених структур адсорбату азом із сферичними.

Проведено детальне дослідження впливу флуктуацій поперечного потоку адсорбату на динаміку структурування поверхні, її морфологію та статистичні властивості. У рамках аналізу на стійкість з використанням числового моделювання встановлено, що збільшення інтенсивності цих флуктуацій приводить до гомогенізації розподілу адсорбату в системі. Встановлено, що у випадку слабких флуктуацій збільшення їх інтенсивності приводить до: а) прискорення процесів структуроутворення, б) уповільнення динаміки росту середнього розміру структур адсорбату, (iii) зменшення лінійного розміру сферичних островів адсорбату. Виявлено, що дія цього шуму приводить до аномального росту середнього розміру острову з асимптотикою  $t^\delta$  та  $\delta < 1$ , порівняно із чисто детерміністичним випадком, коли реалізується нормальний закон росту з  $\delta = 1$ . Показано, що розподіл структур адсорбату за розмірами є універсальним на стадії росту структур. Виявлено, що при підвищених значеннях інтенсивності

флуктуацій потоку адсорбату, її зростання приводить до морфологічного переходу від відокремлених структур адсорбату через лабіринтну структуру до відокремлених отворів в матриці адсорбату. Показано, що у квазі-стаціонарному режимі збільшення інтенсивності флуктуацій приводить до трансформації розподілу структур за розмірами з унімодального для сферичних структур адсорбату через бімодальні розподіли для структур адсорбату різної геометрії та структур отворів різної геометрії до унімодального для сферичних структур отворів. Виявлено, що всі розподіли добре апроксимуються розподілом Лоренця.

Отримані результати можуть бути використані для прогнозування динаміки процесів конденсації адсорбату в системах плазма-конденсат. Вони дозволяють визначити режими контролю морфологією поверхні, типом та середнім розміром поверхневих структур та можуть використовуватись про корегуванні технологічних умов вирощування наноструктурованих тонких плівок із наперед заданими статистичними властивостями поверхневих структур.

Роботу виконано в строк та в повному обсязі.

## СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ

1. Kharchenko V.O. Formation of adsorbate structures induced by external electric field in plasma-condensate systems. / V.O.Kharchenko, A.V.Dvornichenko, V.N.Borysiuk // Eur. Phys. J. B. – 2018. – V.91. – P.93.
2. Dvornichenko A.V. Transitions from low-density state towards high-density state in stochastic bistable plasma-condensate systems. / A.V.Dvornichenko, V.O.Kharchenko, D.O.Kharchenko // Cond. Matter Phys. – 2018. – V.21. – No.4. – P.43001.
3. Kharchenko V.O. Nano-structured thin films growth in stochastic plasma-condensate systems. / V.O.Kharchenko, A.V.Dvornichenko // Eur. Phys. J. B (у редакції журналу).
4. Kharchenko V.O. Nano-sized Adsorbate Islands Formation in Adsorptive Anisotropic Multi-layer Systems. / V.O.Kharchenko, A.V.Dvornichenko, D.O.Kharchenko // Springer, Nanophysics, Nanophotonics, Surface Studies, and Applications (прийнято до друку).
5. Dvornichenko A.V. Formation of Nano-Sized Surface Structures in Adsorptive Multi-Layer Systems / A.V.Dvornichenko, V.O.Kharchenko, I.O.Lysenko // IEEE 8th International Conference on “Nanomaterials: Applications & Properties”. – 2018. – P.01SPN43.
6. D.O.Kharchenko. Nano-Sized Pyramidal Pattern Formation During Epitaxial Growth in the Framework of Phase Field Modeling. / D.O.Kharchenko, A.V.Dvornichenko, O.M.Shchokotova, T.Zhylenko // IEEE 8th International Conference on “Nanomaterials: Applications & Properties”. – 2018. – P.03TFNMC78.
7. Dvornichenko A.V. Nano-structured thin films growth control in multi-layer anisotropic adsorptive systems. / A.V.Dvornichenko, V.O.Kharchenko // “Nanotechnology and nanomaterials”. – 2018. – P.578.
8. Kharchenko V.O. Pattern formation and islands growth control in plasma-condensate system. / V.O.Kharchenko, A.V.Dvornichenko // “Nanotechnology and nanomaterials”. – 2018. – P.573.

**ПЕРЕЛІК ДЖЕРЕЛ ПОСИЛАНЬ**

1. M. Ohring. Materials Science of Thin Films, 2nd Ed. // Academic press: New York. – 2001. – P.794.
2. Hirota E. Giant Magneto-Resistance Devices. / E. Hirota, H. Sakakima, K. Inomata // Springer: Berlin. – 2002.
3. Warburton R.J. Optical emission from a charge-tunable quantum ring / [R.J. Warburton, C.Schafflein, D.Haft, et al] // Nature. – 2000. – V.405, № 6789. – P.926-9.
4. Shah A. Photovoltaic technology: the case for thin-film solar cells / [A. Shah, P. Torres, R. Tscharnner, et al] // Science. – 1999. – V.285, № 5428. – P.692-8.
5. Li-Dong Zhao Ultralow thermal conductivity and high thermoelectric figure of merit in SnSe crystals / [Li-Dong Zhao, Shih-Han Lo, Yongsheng Zhang, et al] // Nature. – 2014. – V.508. – P.373-377.
6. S.A. Campbell. The Science and Engineering of Microelectronic Fabrication. // Oxford University Press: New York. – 1996.
7. Masalski J. Improvement in corrosion resistance of the 316l stainless steel by means of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> coatings deposited by the sol-gel method / [J.Masalski, J.Gluszek, J.Zabrzanski, et al] // Thin Solid Films. – 1999. – V.349. – P.186–190.
8. Vitanov P. Chemical deposition of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin films on Si substrates. / P. Vitanov, A. Harizanova, T. Ivanova, T. Dimitrova // Thin Solid Films. – 2009. – V.517. – P.6327–6330.
9. Chin A.K. Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> as an antireflection coating for InP/InGaAsP LEDs. // J. Vac. Sci. Technol. B Microelectron. Nanom. Struct. – 1983. – V.1. – P.72.
10. Echigoya J. RF magnetron sputtered aluminium oxide coatings on iridium. / J. Echigoya, H. Enoki // J. Mater. Sci. – 1996. – V.31. – P.5247–5256.

11. Gottmann J. Optical properties of alumina and zirconia thin films grown by pulsed laser deposition. / J.Gottmann, A.Husmann, T.Klotzbiicher, E.W.Kreutz // Eur. Phys. Journal. Appl. Phys. – 1998. – V.101. – P.1–4.
12. Carmona-Tellez S. Electrical, optical, and structural characteristics of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin films prepared by pulsed ultrasonic sprayed pyrolysis / [S.Carmona-Tellez, J.Guzman-Mendoza, M.Aguilar-Frutis, et.al.]. J. Appl. Phys. – 2008. – V.103. – P.34105.
13. Aguilar-frutis M. A study of the dielectric characteristics of aluminum oxide thin films deposited by spray pyrolysis from Al(acac)<sub>3</sub>. / [M.Aguilar-frutis, M.Garcia, C.Falcony, et.al.] // Thin Solid Films. – 2001. – V.389. – P.200–206.
14. Dhonge B.P. Spray pyrolytic deposition of transparent aluminum oxide (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) films. / [B.P.Dhonge, T.Mathews, S.T.Sundari, et.al.] // Appl. Surf. Sci. – 2011. – V.258. – P.1091–1096.
15. Ortiz J.C. High quality-low temperature aluminum oxide films deposited by ultrasonic spray pyrolysis. / J.C.Ortiz, A.Alonso // J. Mater. Sci. Mater. Electron. – 2002. – V.13. – P.7–11.
16. Wu Y. The microstructure of alumina coatings prepared by aerosol assisted spray deposition. / Y.Wu, K.L.Choy // Surf. Coatings Technol. – 2004. – V.180–181. – P.436–440.
17. Perekrestov V. I. Self-organization of quasi-equilibrium steady-state condensation in accumulative ion-plasma devices / V. I. Perekrestov, A. I. Olemskoi, Yu. O. Kosminska, A. A. Mokrenko // Physics Letters A. – 2009. – V.373. – P.3386–3392.
18. Kosminska Y. A. Self-assembly of amorphous silicon island systems due to field-induced selectivity / Y. A. Kosminska, A. A. Mokrenko, V. I. Perekrestov // Tech Phys Lett. – 2011. – V.37. – P.538–541.
19. Zhiglinskiy A. G. Mass Transfer at an Interaction of Plasma with Surface./Zhiglinskiy A. G. , Kuchinskiy V. V. // Energoizdat: Moscow. – 1991. – P.205.

20. Pohl K. Identifying the forces responsible for self-organization of nanostructures at crystal surfaces / [K.Pohl, M.C.Bartelt, J.de la Figuera, et al]// Nature. – 1999. – V.397, № 6716. – P.238-241.
21. Mo Y.W. Growth and equilibrium structures in the epitaxy of Si on Si(001) / [Y.W.Mo, B.S.Swartzentruber, R.Kariotis, et al]// Phys.Rev.Lett. – 1989. – V.63, № 20-21. – P.2393-2396.
22. Cirlin G.E. Ordering of nanostructures in a Si/Ge<sub>0.3</sub>Si<sub>0.7</sub>/Ge system during molecular beam epitaxy / G.E.Cirlin, V.A.Egorov, L.V.Sokolov, P.Werner// Semiconductors. – 2002. – V.36, № 11. – P.1294-1298.
23. Bucher J.P. Transition from One- to Two-Dimensional Growth of Cu on Pd(110) Promoted by Cross-Exchange Migration / [J.P.Bucher, E.Hahn, P.Fernandez, et al]// Europhys.Lett. – 1994. – V.27, № 6. – P.473-478.
24. Gorodetskii V. Coupling between adjacent crystal planes in heterogeneous catalysis by propagating reaction-diffusion waves / [V.Gorodetskii, J.Lauterbach, H.A.Rotermund, et. al.] // Nature. – 1994. – V.370. – P.276-279.
25. Kern K. Long-range spatial self-organization in the adsorbate-induced restructuring of surfaces: Cu<sub>100</sub>-(2x1)O / [K.Kern, H.Niehus, A.Schatz, et. al.] // Phys. Rev. Lett. – 1991. – V.67. – P.855.
26. Parker T.M. Epitaxy controlled by self-assembled nanometer-scale structures / T.M.Parker, L.K.Wilson, N.G.Condon, F.M.Leibisler // Phys. Rev. B. – 1997. – V.56. – P.6458.
27. Brune H. Self-organized growth of nanostructure arrays on strain-relief patterns / H.Brune, M.Giovannini, K.Bromann, K.Kern // Nature. – 1998. – V.394. – P.451-453.
28. Clark P.G. Interface effects on the growth of cobalt nanostructures on molybdenum-based substrates / P.G.Clark, C.M.Friend // J. Chem. Phys. – 1999. – V.111. – P.6991-6996.



29. Marchand P. Aerosol-assisted delivery of precursors for chemical vapour deposition: expanding the scope of CVD for materials fabrication. / P.Marchand, I.A.Hassan, I.P.Parkin, C.J.Carmalt // Dalton Trans. 2013. – V.42. – 9406–22.
30. Heldebrand M. Nonequilibrium stationary microstructures in surface chemical reactions /M.Heldebrand, A.S.Mikhailov, G.Ertl// Phys.Rev.E.-1998.- **58**, № 5.- P.5483-5493.
31. Kharchenko V. O. Properties of nano-islands formation in nonequilibrium reaction-diffusion systems with memory effects / V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, S. V. Kokhan, I. V. Vernyhora, V. V. Yanovsky // Phys.Scr.-2012.-Vol. 86.-P.- 055401.
32. Kharchenko V. O. Nanosize pattern formation in overdamped stochastic reaction-diffusion systems with interacting adsorbate / V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko // Phys.Rev.E.- 2012.- Vol. 86. - P.- 041143-041154.
33. Kharchenko V. O. Statistical properties of nanosized clusters on a surface in overdamped stochastic reaction-Cattaneo systems / V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, A. V. Dvornichenko // Surf.Sci.-2014. -Vol. 630. - P. - 158-167.
34. Hildebrand M. Mesoscopic Modeling in the Kinetic Theory of Adsorbates / M.Hildebrand, A.S.Mikhailov// J.Phys.Chem.-1996.- **100**, № 49.- P.19089-19101.
35. Batogkh D. Nucleation kinetics and global coupling in reaction-diffusion systems / D.Batogkh, M.Hildebrand, F.Krischer, A.Mikhailov // Phys.Rep.-1997.- **288**.- P.435-456.
36. Heldebrand M. Traveling Nanoscale Structures in Reactive Adsorbates with Attractive Lateral Interactions /M.Heldebrand, A.S.Mikhailov, G.Ertl// Phys.Rev.Lett.-1998.- **81**, № 12.- P.2602-2605 (1998).
37. Mikhailov A. Pattern formation by adsorbates with attractive lateral interactions / A.Mikhailov, G.Ertl// Chem.Phys.Lett.-1994.- **238**, № 1-3.- P.104-109.

38. Kharchenko V. O. Statistical properties of abnormal nano-sized adsorbate islands growth in a model of adsorptive multilayer system / V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko // *Surface Science*. -2015. - Vol. 637 -638. - P. 90-100.
39. Casal S. B. Phase transitions and adsorption isotherm in multilayer adsorbates with lateral interactions / S. B. Casal, H. S. Wio, S. Mangioni // *Physica A*. - 2002. - Vol. 311. - P. 443–15.
40. Walgraef D. Nanostructure evolution during thin film deposition / D. Walgraef // *Physica E*. - 2003. - Vol. 18. - P. 393–402.
41. Walgraef D. Reaction-diffusion approach to nanostructure formation and texture evolution in adsorbed monoatomic layers/ D. Walgraef // *Int.Journal of Quantum Chemistry Int J Quantum Chem*. - 2004. - Vol. 98. P. 248–13.
42. Benning L. Nucleation, Growth, and Aggregation of Mineral Phases: Mechanisms and Kinetic Controls. In: Brantley S., Kubicki J., White A. (eds) *Kinetics of Water-Rock Interaction*. / L.Benning, G.Waychunas // Springer: New York. – 2008.
43. Ferrando R. Nanoalloys: From Theory to Applications of Alloy Clusters and Nanoparticles. / R.Ferrando, J.Jellinek, R.L.Johnston // *Chem. Rev.* – 2008. – V.108. – P.845-910.
44. Jortner J. Cluster size effects. // *Z. Phys. D: At. Mol. Clusters*. – 1992. – V.24. – P.247-275.
45. Chaudhuri R.G. Core/shell nanoparticles: classes, properties, synthesis mechanisms, characterization, and applications. / R.G.Chaudhuri, S.Paria // *Chem. Rev.* – 2012. – V.112. – P.2373-2433.
46. Johnston R.L. The development of metallic behaviour in clusters. // *Philos. Trans. R. Soc. London, Ser. A*. – 1998. – V.356. – P.211.
47. Kharchenko Vasyl O. Nano-sized Adsorbate Structure Formation in Anisotropic Multilayer System/ Vasyl O. Kharchenko, Dmitrii O. Kharchenko, Vladimir V. Yanovsky // *Nanoscale Research Letters*. - 2017. - Vol. № 12. P.- 337-345.

48. Sierra J.A. Stochastic resonance in a realistic model for surface adsorption. / J.A.Sierra, H.S.Wio // Cent. Eur. J. Phys. – 2012. – V.10. – P.625-630.
49. Gimenez M.C. Stochastic resonance phenomenon in Monte Carlo simulations of silver adsorbed on gold // Eur. Phys. J. B. – 2016. – V.89. – P.83.
50. Wio H.S. Stochastic resonance in spatially extended systems // Phys. Rev. E. – 1996. – V.55. – P.R3075.
51. Castelpoggi F. Stochastic resonance in extended systems: enhancement due to coupling in a reaction-diffusion model / F.Castelpoggi, H.S.Wio // Europhysics Letters. – 1997. – V.38. – P.91.
52. Van Kampen N.G. Stochastic Processes in Physics and Chemistry. // North-Holland: Amsterdam. – 1992.
53. Garcia-Ojalvo J. Noise in Spatially Extended Systems. / J.Garcia-Ojalvo, J.M.Sancho // Springer: New York. – 1999.
54. Kharchenko V.O. Formation of adsorbate structures induced by external electric field in plasma-condensate systems. / V.O.Kharchenko, A.V.Dvornichenko, V.N.Borysiuk // Eur. Phys. J. B. – 2018. – V.91. – P.93.
55. Swift J. Hydrodynamic fluctuations at the convective instability. / J.Swift, P.C.Hohenberg // Phys. Rev. A. – 1977. – V.15. – P.319.
56. Sancho J.M. Analytical and numerical studies of multiplicative noise / J.M.Sancho, M.San Miguel, S.L Katz, J.D.Gunton // Phys. Rev. A. – V.26. – 1982. – P.1589.
57. Box G.E.P. A note on the generation of random normal deviates. / G.E.P.Box, M.E.Muller // Ann. Math. Stat. – V.29. – 1958. – P.610-611.
58. Adsorption and reaction of  $Rh(CO)_2(acac)$  on  $Al_2O_3/Ni_3Al(111)$  / [Y.Lei, A.Uhl, C.Becker, et al.] // Phys. Chem. Chem. Phys. – V.12. – 2010. – P.1264-1270.

59. Lai X. Oxygen induced morphological changes of Ag nanoclusters supported on  $TiO_2(110)$  / X.Lai, T.P.St.Clair, D.W.Goodman // Faraday Discuss. – V.114. – 1999. – P.279-284.
60. Leonhardt D. Energetics of Ge nucleation on  $SiO_2$  and implications for selective epitaxial growth. / D.Leonhardt, S.M.Han // Surface Science. – 2009. – v.603. – P.2624-2629.
61. Hunter K.I. Nonthermal plasma synthesis of core/shell quantum dots: strained Ge/Si nanocrystals. / K.I.Hunter, J.T.Held, K.A.Mkhoyan, U.R.Kortshagen // ACS Appl. Mater. Interfaces. – 2017. – V.9. – P.8263-8270.
62. Perekrestov V.I. Self-organization of copper nanosystems under Volmer–Weber conditions during quasi-equilibrium condensation. / V.I.Perekrestov, Yu.O.Kosminska, A.S.Kornyushchenko, V.M.Latyshev // Physica B. – 2013. – V.411. – P.140-148.
63. Kornyushchenko A.S. Formation of copper porous structures under near-equilibrium chemical vapor deposition. / A.S.Kornyushchenko, V.V.Natalich, V.I.Perekrestov // Journal of Crystal Growth. – 2016. – V.442. – P.68-74.