

PACS numbers: 05.40.-a, 05.65.+b, 68.35.Dv, 68.43.-h, 68.55.J-, 81.15.Aa, 82.40.Np

Моделювання динаміки формування та росту нанорозмірних поверхневих структур в системах «плазма–конденсат»

А. В. Дворниченко¹, Д. О. Харченко², В. О. Харченко²

¹*Сумський державний університет,
вул. Римського-Корсакова, 2,
40007 Суми, Україна*

²*Інститут прикладної фізики НАН України,
вул. Петропавлівська, 58,
40000 Суми, Україна*

Проведено теоретичні дослідження динаміки перерозподілу концентрації адсорбату у системах «плазма–конденсат» з урахуванням анізотропії в переходах адатомів між шарами, спричиненої дією підведеного до підкладинки зовнішнього електричного поля. Побудовано узагальнений теоретичний модель для опису процесів формування просторових відокремлених поверхневих структур на одному з шарів багат шарової системи. У рамках однорідної системи встановлено умови реалізації переходів плазма–конденсат першого роду. У припущенні, що сила анізотропії змінюється у часі періодичним і стохастичним чином, досліджено залежність часу переходу системи від стану з низькою густиною адсорбату до стану з високою густиною адсорбату від параметрів зовнішнього періодичного та стохастичного навантаження. У рамках аналізу на стійкість однорідних стаціонарних станів до неоднорідних збурень встановлено умови структурування зростаючої поверхні. У рамках процедури числового моделювання встановлено режими контролювання динамікою структурування поверхні, морфологією поверхні, типом і розміром поверхневих структур. Встановлено вплив тиску всередині камери, енергії взаємодії адсорбату, середнього значення напруженості електричного поля на статистичні властивості наноструктурованих тонких плівок у системах «плазма–конденсат». Проведено узагальнення моделю з урахуванням флюктуацій поверхневого потоку адсорбату та виявлено вплив їхньої інтенсивності на морфологічні перетворення в структурі поверхні шару, тип і лінійний розмір поверхневих структур, їхню кількість і розподіл структур за розмірами. Вивчено вплив флюктуацій напруженості підведеного до підкладинки електричного поля на динаміку упорядкування адсорбату на поверхні та статистичні властивості поверхневих структур при конденсації. Досліджено конкурувальний вплив регулярної та стохастичної частин зовнішнього потоку на динаміку системи. Проаналізовано здатність флюктуацій індукувати процеси формування поверхневих структур, керу-

вати динамікою структуроутворення, просторовим порядком, морфологією поверхні, законом росту середнього розміру островів адсорбату, типом і лінійним розміром поверхневих структур. У рамках багат шарового моделю проаналізовано динаміку просторового перерозподілу адсорбату на кожному шарі багат шарової системи «плазма–конденсат».

Theoretical studies of the dynamics of the adsorbate-concentration redistribution in ‘plasma–condensate’ systems are provided. We take into account anisotropy in the transitions of adatoms between the neighbour layers caused by the action of the external electric field near the substrate. A generalized theoretical model for describing the formation processes of spatial separated surface structures on one of the layers of a multilayer system is derived. Within the framework of the homogeneous system, the conditions of realization of the first-order plasma–condensate transitions are established. Assuming that the anisotropy force changes in time periodically and stochastically, the dependence of the transition time of the system from the low adsorbate state to the high adsorbate state on the external periodic and stochastic loading parameters is investigated. By using the stability analysis of the homogeneous stationary states with respect to inhomogeneous perturbations, the conditions for structuring the growing surface are established. Within the framework of the numerical simulation procedure, the control regimes for the dynamics of surface structuring, surface morphology, type and size of surface structures are revealed. The influences of the pressure inside the chamber, the interaction energy of the adsorbate, the average value of the electric-field strength on the statistical properties of nanostructured thin films in plasma–condensate systems are established. The generalization of the model by considering fluctuations of the surface flow of the adsorbate is carried out, and the influence of their intensity on the morphological transformations in the structure of the layer surface, the type and linear size of surface structures, their number and distribution of structures by size is revealed. The influence of fluctuations of the electric field near the substrate on the dynamics of the adsorbate ordering over the surface and the statistical properties of surface structures during condensation is studied. The competitive influence of regular and stochastic parts of the external flow on the dynamics of the system is investigated. The ability of fluctuations to induce processes of surface-structures’ formation, to control the dynamics of structure formation, spatial order, surface morphology, the law of growth of the average size of adsorbate islands, the type and linear size of surface structures is analysed. Within the multilayer model, the dynamics of spatial redistribution of the adsorbate on each layer of the multilayer ‘plasma–condensate’ system is analysed.

Ключові слова: системи «плазма–конденсат», конденсація, адсорбат, процеси адсорбції–десорбції, нанорозмірні поверхневі структури, морфологія поверхні.

Key words: ‘plasma–condensate’ systems, condensation, adsorbate, adsorption–desorption processes, nanosize surface structures, surface morphology.

(Отримано 27 січня 2020 р.; остаточна версія — 5 березня 2020 р.)

1. ВСТУП

Тонкі плівки відносяться до будь-якого матеріялу, який має товщину від одного атомного шару до декількох мікрометрів, а наноструктури відносяться до будь-якого матеріялу, що складається з нанорозмірних частинок. Ці об'єкти стали невід'ємною частиною сучасних технологій, із застосуванням від мікроелектроніки (будучи частиною мініатюрних приладів) до виготовлення різальних інструментів для мікрообробляння [1]. На сьогоднішній день такі наноструктуровані тонкі плівки набувають зростаючого інтересу через їх технологічні застосування в сучасних наноелектронних пристроях завдяки винятковим функціональним здібностям [2–5]. Екзотичні нові матеріяли, що характеризуються малими розмірами, можуть використовуватися для утворювання метастабільних сплавів, або плівок з метою створення зовсім іншої атомної структури, накладеної підкладинкою. Тонкі плівки використовуються сьогодні в широкому діапазоні застосувань, таких як покриття для інструментів різання, оптичні та декоративні покриття, сонячні батареї, 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, золь-гель-синтез [7, 8], атомне осадження шару, осадження електронним пучком [9], розпилення [10], імпульсне лазерне осадження [11], піроліз з ультразвуковим спреєм [12–15], розпорошувальне напорошення [16] можна об'єднати у фізичні процеси осадження, оскільки при цих методиках частинки з парової фази осаджуються на підкладинку фізичними засобами.

Йонно-плазмові пристрої широко використовуються для виробництва відокремлених сферичних структур адсорбату на поверхні з невеликим лінійним розміром [17, 18]. У таких системах процес росту відокремлених багатошарових структур адсорбату відбувається за наступним механізмом. Йони, розпорошені магнетроном, досягають зростаючої поверхні, яка розташована в порожньому катоді, і стають адатомами. Через наявність електричного поля поблизу підкладинки певна частина адатомів повторно випаровується (десорбується з підкладинки), щоб знову йонізуватись, 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 підкладинки. 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] і металів [23] та сфе-

ричні вакансійні острови (наноотвори) або острови адсорбату (наноточки) [24–28].

Властивості плівки тісно пов'язані з її мікроструктурою, яка, в свою чергу, може бути змінена під час 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 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 багат шарові системи газ-конденсат проявляють каскад фазових переходів першого роду, коли формується новий додатковий шар адсорбату [38, 39]. Такі системи в основному вивчалися за умови рівномірних 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 Вольмера–Вебера; б) 2-вимірне або пошарове зростання, також відоме як режим Франка–Ван дер Мерве; в) змішаний режим, що розпочинається двовимірним 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 та магнетизму [43–46].

Процеси росту тонких плівок та відповідних островів Вольмера–Вебера включають в себе безліч атомно-масштабних процесів, які не завжди легко вивчати експериментально. Числове моделювання слугує 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 [39, 47]. Для тестування теоретичних моделей росту тонких плівок виконуватися різні типи комп'ютерних симуляцій. 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. Такі системи проявляють процеси самоорганізації з формуванням різних просторово-часових структур. Ці структури виникають у результаті взаємодії нелінійної кінетики реакцій, дифузії рухомих частинок та їх взаємодії. Такі ефекти набувають підвищеної уваги в різних областях, включаючи

фізику, хімію та біологію [48]. Самоорганізація адсорбованих частинок (адатомів) в абсорбційних бістабільних системах приводить до утворення стабільних відокремлених островів адсорбату на підкладинці або утворення розділених отворів усередині матриці адсорбату [49–51]. 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.

Бістабільні системи можуть проявляти ефекти стохастичного резонансу в умовах періодично змінюваного тиску газоподібної атмосфери (див., наприклад, [52]), або хімічного потенціалу [53]. Ефект стохастичного резонансу використовується для оптимізації співвідношення вихідного сигналу до шуму, коли коливання (шум) грають конструктивну роль і посилюють відповіді нелінійної динамічної системи, піддані слабкому зовнішньому періодичному сигналові [54, 55].

Нелінійні системи зазвичай проявляють невпорядковану поведінку за відсутності флюктуацій. Вплив флюктуацій різної природи на динаміку та статистичні властивості просторово-розподілених систем є предметом підвищеної уваги теоретичних досліджень протягом останніх десятиліть [56–62]. Було показано, що шум може спричинити упорядкування та індукувати реалізацію нових динамічних станів [63, 64]. Багато досліджень були зосереджені на вивченні індукованих флюктуаційних явищ, які демонструють здатність флюктуацій приводити до ефектів самоорганізації. Велика частина ранніх робіт була присвячена дослідженню ефектів флюктуацій у нульвимірних системах. Останнім часом став досліджуватися вплив флюктуацій на системи з великим числом ступенів свободи, так звані просторово-розподілені системи. Найбільш цікавими ефектами у таких системах є індуковані шумом процеси формування просторових структур та фазові переходи [65, 66]. Фазовий перехід з формуванням упорядкованого стану (фази у термодинамічному сенсі) реалізується, коли до динамічної системи уводиться випадкове флюктувальне джерело [67–70]. Флюктуаційно-індуковані ефекти вивчалися в різних класах задач [71, 72]. У процесах адсорбції в стохастичному моделі «газ–конденсат» флюктуації, що пов'язані із внутрішньою динамікою системи, регулюють фазові переходи між щільною та розбавленою фазами та керують типом та розміром поверхневих структур [36]. З фундаментальної точки зору такі ефекти мають динамічне походження: у короткочасній межі флюктуації дестабілізують невпорядкований однорідний стан. Шум відіграє організуючу роль, якщо його амплітуда залежить від змінної поля [63, 64]. Крім того, упорядкована фаза може існувати для певного діапазону значень інтенсивності шуму. Ці ефекти, відомі як реверсивні фазові переходи, коли збільшення інтенсивності шуму приводить до формування впорядкованого стану у фіксованому діапазоні зміни

інтенсивності шуму. Така реверсивність є результатом спільної дії нелінійності системи та просторової взаємодії.

Метою даної роботи є встановлення умов реалізації відокремлених структур адсорбату в багат шаровому моделі системи «плазма–конденсат» і проведення теоретичних досліджень динаміки перерозподілу концентрації адсорбату на одному з шарів багат шарової системи «плазма–конденсат» з урахуванням анізотропії в переходах адатомів між шарами, викликаній дією підведеного до підкладинки зовнішнього електричного поля. Буде побудовано узагальнений теоретичний модель для опису процесів формування просторових відокремлених поверхневих структур на одному з шарів багат шарової системи. У припущенні, що сила 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 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, енергії взаємодії адсорбату та напруженості електричного поля на статистичні властивості наноструктурованих тонких плівок в системах «плазма–конденсат». Буде проведено узагальнення моделю з урахуванням флюктуацій поверхневого потоку адсорбату та виявлено вплив їх інтенсивності на морфологічні перетворення в структурі поверхні шару, тип та лінійний розмір поверхневих структур, їх кількість та розподіл структур за розмірами. Буде вивчено вплив флюктуацій напруженості підведеного до підкладинки електричного поля на динаміку упорядкування адсорбату на поверхні та статистичні властивості поверхневих структур при конденсації. Буде досліджено конкурувальний вплив регулярної та стохастичної частин зовнішнього потоку на динаміку системи. Буде проаналізовано здатність флюктуацій індукувати процеси формування поверхневих структур та керувати динамікою й статистичними властивостями системи. У рамках багат шарового моделю буде проаналізовано динаміку просторового перерозподілу адсорбату на кожному шарі багат шарової системи «плазма–конденсат».

Роботу організовано наступним чином. У Розділі 2 буде побудовано одношаровий математичний модель, що описує просторово-часову еволюцію адсорбату при конденсації з урахуванням ефектів взаємодії адсорбату, анізотропії в переходах адатомів між шарами, викликаній підведеним до підкладинки електричним полем, та флюктуацій різної природи. У третьому розділі буде проведено детальне дослідження однорідної системи зі встановленням умов ре-

лізації переходів між розбавленою та щільною фазами. Розділ 4 присвячено аналізу стійкості однорідних стаціонарних станів до неоднорідних збурень, де буде встановлено умови реалізації поверхневих структур при конденсації. У Розділі 5 представлено результати числового моделювання процесів формування та росту поверхневих структур при конденсації та встановлено умови контролювання морфологією зростаючої поверхні, типом та розміром поверхневих структур. Результати числового моделювання процесів росту структур адсорбату у багатошаровому моделі «плазма–конденсат» подано у Розділі 6. Основні висновки зібрано в останньому розділі.

2. МАТЕМАТИЧНИЙ МОДЕЛЬ СИСТЕМИ «ПЛАЗМА–КОНДЕНСАТ»

Для опису еволюції концентрації адсорбату на підкладинці у багатошаровій 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 абсорбованих 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 багатошарової системи задається рівнянням реакційно-дифузійного типу у стандартному вигляді:

$$\partial_t x_n(\mathbf{r}, t) = f(x_n) - \nabla \cdot \mathbf{J}_n \quad (1)$$

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 багатошарової системи. Відповідно до стандартного підходу опису процесів конденсації реакційна складова $f(x_n)$ включає адсорбцію (збільшення локальної концентрації адсорбату за рахунок того, що атом/іон досягає певного шару і стає адатомом) та десорбцію (зменшення локальної концентрації адсорбату коли адатом з ненульовою ймовірністю покидає шар і десорбується назад у газову фазу). Крім того, при описі багатошарових систем, дискретних у вертикальному напрямку (за кількістю шарів) необхідно також врахувати переходи адатомів між сусідніми шарами. При цьому слід враховувати 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 відповідних квазіхімічних реакцій, що реалізуються на поверхні, наведено на рис. 1.

Процеси адсорбції описуються складовою $k_a x_{n-1}(1 - x_n)(1 - x_{n+1})$, де

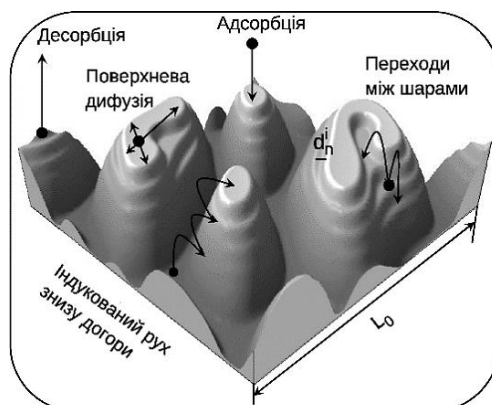


Рис. 1. Схематичне зображення багатошарових структур адсорбату та основних процесів, що реалізуються при конденсації.¹

$k_a = \omega \text{rexp}(-E_a/T)$ це коефіцієнт адсорбції, визначений через тиск всередині камери p , енергію активації адсорбції E_a , температуру T , виміряну в енергетичних одиницях, і частотний фактор ω . Ці процеси потребують $(1 - x_n)$ вільних місць для адсорбції 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 -му шарі.

Адсорбовані частинки (адатоми) можуть десорбуватися з шару зі швидкістю $k_d = k_d^0 \text{exp}(U_n / T)$, визначеної через коефіцієнт десорбції незв'язаних частинок $k_d^0 = \omega \text{exp}(-E_d / T)$, де E_d це енергія активації десорбції, та потенціал взаємодії $U_n(r)$. Середній час життя адатома τ_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 $k_d x_n x_{n-1} (1 - x_{n+1})$. Переходи адатомів між сусідніми шарами визначаються ймовірностями руху зверху вниз ω_\downarrow та знизу вверх ω_\uparrow . У граничному випадку $\omega_\uparrow = \omega_\downarrow$ одержуємо стандартну вертикальну дифузію [38]. 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 переважаючими переходами від верхніх шарів до нижніх, що приводить до $\omega_\uparrow / \omega_\downarrow < 1$ [39]. У системах «плазма-конденсат» підведене до підкладки електричне поле індукує зворотній анізотропний рух атомів з $\omega_\uparrow / \omega_\downarrow > 1$ [47]. В останньому випадку можна покласти $\omega_\uparrow = \omega_\downarrow + \omega_E$, де сила анізотропії переходів адатомів між сусідніми шарами з переважаючими переходами знизу вгору $\omega_E = |E|Ze/T$ пропорційна до напруженості електричного поля біля підкладки $|E|$; Z — координаційне число, а e — заряд еле-

ктрона. Враховуючи, що такі переходи можливі лише на вільні місця, маємо $\omega_{\downarrow}(x_{n-1} + x_{n+1} - 2x_n) + \omega_E[x_{n-1}(1 - x_n) - x_n(1 - x_{n+1})]$ для реакцій переходів адатомів між шарами, де перший доданок визначає стандартну вертикальну дифузію, а другий пов'язаний із індукованою електричним полем анізотропією.

Розглядаючи адатоми як мобільні взаємодійні частинки, потік адсорбату на певному n -му шарі J_n має включати як вільну поверхневу дифузію, що задається відповідно до стандартного визначення $D_{\leftrightarrow}\nabla x_n$ з коефіцієнтом 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 [35–41, 47] потенціал взаємодії $U_n(r)$ може бути визначений в рамках апроксимації самоузгодженого підходу через бінарний притягальний потенціал для двох адатомів, розділених відстанню r у наступному вигляді $U_n(r) = -x_{n-1}(r)\int u(r-r')x_n(r')dr$. Тут нами враховано, що така взаємодія на певному n -му шарі відбувається за умови наявності ненульової концентрації адсорбату на $(n-1)$ -му шарі багатшарової системи. Відповідно до робіт [30, 33] будемо вважати, що бінарний потенціал $u(r)$ має симетричну форму, тобто $\int r^{2m+1}u(r)dr = 0$, $m = 1, \dots, \infty$. У якості найпростішої апроксимації із заданими властивостями виберемо Гаусіян у стандартному вигляді:

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

де ε — енергія взаємодії адсорбату, а r_0 — радіус взаємодії адатомів. Припускаючи, що концентрація адсорбату x змінюється достатньо повільно в межах радіуса взаємодії, можна використати розвинення інтегралу

$$\int u(\mathbf{r} - \mathbf{r}')x_n(\mathbf{r}')d\mathbf{r}' \approx \int u(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \sum_m \frac{(\mathbf{r} - \mathbf{r}')^m}{m!} \nabla^m x_n(\mathbf{r})d\mathbf{r}'. \quad (3)$$

Підставляючи рівняння (2) до рівняння (3), одержуємо потенціал взаємодії у вигляді (до складових четвертого порядку):

$$U(r) \approx -\varepsilon x_{n-1} \left[x_n + \left(1 + r_0^2 \nabla^2\right)^2 x_n \right], \quad (4)$$

де $\int u(r)x_n(r)dr = 2\varepsilon x_n$,

$$(1/2)\int u(r)r^2\nabla^2 x_n(r)dr = 2\varepsilon r_0^2\nabla^2 x_n, \quad (1/4)\int u(r)r^4\nabla^4 x_n(r)dr = \varepsilon r_0^4\nabla^4 x_n,$$

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 дискретного моделю у вертикальному напрямку за кількістю шарів необхідно одночасно розв'язувати N реакційно-дифузійних рівнянь (1). При цьому збільшення кількості шарів приводить до суттєвого збільшення часу обчислень та потребує великих обчислювальних потужностей.

У такому разі постає актуальна проблема побудови одношарового моделю, який би адекватно описував процеси формування та росту відокремлених поверхневих структур на певному шарі багат шарової системи. При цьому такий одношаровий 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) мають бути враховані переходи адатомів між шарами.

Для побудови такого моделю необхідним є встановлення певної функціональної залежності концентрації адсорбату на сусідніх $(n + 1)$ -му та $(n - 1)$ -му шарах від концентрації адсорбату на n -му шарі. Концентрацію адсорбату на будь-якому n -му шарі будемо розглядати як відношення площі, покритої адсорбатом на n -му шарі, S_n і площі підкладки S_0 , тобто $x_n = S_n/S_0$: $S_0 \propto L_0^2$, де L_0 — лінійний розмір підкладки; $S_n = \sum_i^M s_{ni} = \pi \sum_i^M r_{ni}^2$, де s_{ni} — площа i -ї структури на n -му шарі; сума береться по всім M структурам. Дотримуючись принципу мінімізації поверхневої енергії припускаємо, що лінійний розмір кожної i -ї багат шарової структури зменшується з ростом кількості шарів n на ширину тераси $d = \langle d_n^i \rangle$, усередненої за всіма M структурами та всіма N шарами (див. рис. 1).

Формально ми можемо об'єднати всі M площ, вкритих адсорбатом, на n -му шарі, в одну структуру з лінійним розміром r_n , що дає $S_n \propto r_n^2$. У такому випадку r_n зменшується з номером шару n на величину Δ , яка представляє ширину тераси для побудованої багат шарової структури. З наївного розгляду випливає, що $d < \Delta < L_0$ і $\Delta = \Delta(d, L_0, N)$.

У найпростішому випадку ми можемо покласти $r_n = r_1 - (n - 1)\Delta$ [73]. Цей вираз дає відношення між площею, покритої адсорбатом на будь-якому n -му шарі, та площею зайнятою адсорбатом на першому шарі у вигляді: $S_n \propto S_1 [1 - (n - 1)\Delta/r_1]^2$. Таким чином, для концентрації адсорбату на n -му шарі та сусідніх $(n - 1)$ -му й $(n + 1)$ -му шарах одержуємо:

$$x_n = \frac{S_1}{S_0} \left[1 - (n - 1) \frac{\Delta}{r_1} \right]^2, \quad x_{n \pm 1} = \frac{S_1}{S_0} \left\{ \left[1 - (n - 1) \frac{\Delta}{r_1} \right] \mp \left[\frac{\Delta}{r_1} \right] \right\}^2 =$$

$$= \frac{S_1}{S_0} \left[1 - (n-1) \frac{\Delta}{r_1} \right]_{x_n}^2 \mp 2 \frac{\Delta}{r_1} \frac{S_1}{S_0} \left[1 - (n-1) \frac{\Delta}{r_1} \right]_{\sqrt{x} \sqrt{S_0/S_1}} + \frac{S_1}{S_0} \left(\frac{\Delta}{r_1} \right)^2. \quad (5)$$

Після простих алгебраїчних перетворень знаходимо [73]:

$$x_{n\pm 1} = \left(\sqrt{x_n} \mp \beta / 2 \right)^2, \quad (6)$$

де $\beta = 2\Delta/L_0 < 1$. З фізичної точки зору, значення ширин терас Δ та d залежать властивостей осаджуваного матеріалу, температури та умов осадження та можуть бути встановлені в рамках реального експерименту. При проведенні теоретичних розрахунків і числового моделювання у нашому моделі величини Δ та d є параметрами моделювання. Таким чином, використовуючи рівняння (6), реакційній складовій $f(x = x_n)$ надаємо вигляду:

$$f(x) = \alpha(1-x)v(x) - xv(x)e^{-2\varepsilon x \left(\sqrt{x} + \frac{1}{2}\beta \right)^2} + u\beta\sqrt{x}(1-2x) + \frac{1}{4}\beta^2(u + 2D_b), \quad (7)$$

де уведено безрозмірні параметри $\varepsilon = \varepsilon/T$, $\alpha \equiv k_a / k_d^0$, $u = \omega_E / k_d^0$, $D_b \equiv \omega_\downarrow / k_d^0$ та використано позначення:

$$v(x) = \left(\sqrt{x} + 1 / 2\beta \right)^2 \left[1 - \left(\sqrt{x} - 1 / 2\beta \right)^2 \right].$$

Загальний потік адсорбату J має вигляд:

$$J = -D_{\leftrightarrow} \left[\nabla x - \varepsilon\gamma(x)\nabla \left\{ x + \left(1 + r_0^2\nabla^2 \right)^2 x \right\} \right], \quad (8)$$

де $\gamma(x) = \mu(x) \left(\sqrt{x} + 1 / 2\beta \right)^2$. Потік адсорбату (8) можна ефективно розділити на дві складових, а саме, $J = J_1 + J_2$, де

$$J_1 = -D_{\leftrightarrow} (1 - \varepsilon\gamma(x))\nabla x, \quad J_2 = D_{\leftrightarrow} \varepsilon\gamma(x)L_{SH}x. \quad (9)$$

Тут у визначенні потоку J_2 використано позначення оператора Свіфта-Хоенберга $L_{SH} = (1 + r_0^2\nabla^2)^2$ [74].

Для опису еволюції зростаючої поверхні в більш реалістичних умовах необхідно враховувати стохастичну природу електричного поля. Це означає, що напруженість електричного поля $|E|$ може розглядатися як флюктувальний параметер моделю. Враховуючи невеликі відхилення напруженості електричного поля від середнього значення $|E_0|$, далі розкладемо реакційну складову $f(u)$ рівняння (7) в околі u_0 . У результаті одержуємо: $f = f(u_0) + \left(\partial f / \partial u \right) \Big|_{u=u_0} \xi$, де ξ

представляється стохастичним полем, $\xi = \xi(r, t)$, що у найпростішому випадку являє собою білий дельта-корельований Гаусів шум з властивостями: $\langle \xi(r, t) \rangle = 0$, $\langle \xi(r, t) \xi(r', t') \rangle = 2\sigma^2 \delta(t - t') \delta(r - r')$, де σ^2 — інтенсивність флюктуацій напруженості підведеного до підкладки зовнішнього електричного поля, пропорційна до середнього значення напруженості $|E_0|$.

При такому підході керуючий параметер u у рівнянні для реакційної складової $f(x)$, що задає силу анізотропії у переходах атомів між сусідніми шарами, може змінюватись з часом. Загалом, такі зміни можуть бути викликані як флюктуаціями напруженості поля, так і періодичною зміною його напруженості. У загальному випадку можемо формально записати:

$$u = u_0 + A \sin(\omega t) + \xi(t), \quad (10)$$

де $u_0 = \langle u \rangle$ визначає певне середнє значення; A і ω задають амплітуду та частоту періодичних змін напруженості електричного поля відповідно.

З іншого боку, потік J_2 у рівнянні (9) описує вплив мікрорівня (взаємодійні адатоми) на процес формування структур адсорбату на мезорівні, де опис динаміки системи проводиться з використанням локальної концентрації адсорбату, як основної змінної. У загальному випадку потік J_2 має як регулярну, так і стохастичну частини:

$$J_2 = D_{\leftrightarrow} \varepsilon \gamma(x) L_{SH} x + \zeta(x; r, t), \quad (11)$$

де для стохастичного доданку $\zeta(x; r, t)$ використано Гаусові властивості: $\langle \zeta(x; r, t) \zeta(x'; r', t') \rangle = 2 \sum D_{ef}(x) \delta(t - t') \delta(r - r')$. Тут $D_{ef}(x) = D_{\leftrightarrow} \varepsilon \gamma(x)$, а Σ задає інтенсивність цих флюктуацій. Об'єднуючи рівняння (7)–(11), враховуючи часові зміни в силі анізотропії вертикального руху адатомів між шарами (10), уводячи дифузійну довжину $L_D \equiv \sqrt{D_{\leftrightarrow} / k_d^0}$, рівнянню еволюції концентрації адсорбату на певному шарі багатошарової системи «плазма–конденсат» надаємо вигляду:

$$\frac{\partial x}{\partial t} = f(x) + A g(x) \sin(\omega t) + \sigma^2 g(x) \frac{dg(x)}{dx} - L_D^2 \nabla J - \frac{\Sigma}{2} \nabla \cdot \left(\nabla \frac{dD_{ef}}{dx} \right) + \quad (12)$$

$$+ g(x) \xi(t) + \nabla \sqrt{D_{ef}(x)} \tilde{\xi}(r, t),$$

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

Одержаний модель еволюції концентрації адсорбату на проміжному шарі багатошарової системи має одне фізичне обмеження, пов'язане з граничним значенням концентрації адсорбату на попе-

редньому $(n - 1)$ шарі, $x_{n-1} = 1$, що відповідає підкладинці. У такому разі граничне значення концентрації адсорбату на поточному (першому) шарі, $x_{\max} = (1 - 1/2\beta)^2$ дозволяє визначити мінімальне значення сили анізотропії u або максимальне значення параметра β із співвідношення $f(x_{\max}) = 0$.

На рисунку 2 наведено залежності мінімального значення сили анізотропії u_{\min} від параметра β . Тут залежність $u_{\min}(\beta)$ обмежує область I параметрів системи, коли концентрація адсорбату на поточному шарі не перевищує значення x_{\max} . З рисунку 2 видно, що навіть нескінченно мале значення β , що визначає різницю в концентрації адсорбату на сусідніх шарах, вимагає ненульового значення сили анізотропії u_{\min} для забезпечення виконання умови $x_{n-1} \leq 1$. При $\beta \rightarrow 0$ концентрація адсорбату на будь-якому шарі залишається постійною, визначеною коефіцієнтом адсорбції α та енергією взаємодії ϵ . У цьому випадку рівняння (12) описує еволюцію концентрації адсорбату в одношаровому моделі без урахування переходів адатомів між шарами (пошарове зростання товщини плівки). Звідси випливає, що збільшення коефіцієнта адсорбції α або енергії взаємодії ϵ приводить до зменшення області I, коли реалізується багатошаровий ріст. На вставці на рис. 2 наведено залежності $u_{\min}(\alpha)$ при фіксованому $\beta = 0,1$. Видно, що у випадку малого тиску ($\alpha \rightarrow 0$) багатошарове зростання плівки з пірамідальними структурами можливе лише при ненульовій силі анізотропії u (перенесення адатомів між сусідніми шарами, спричинене електричним полем).

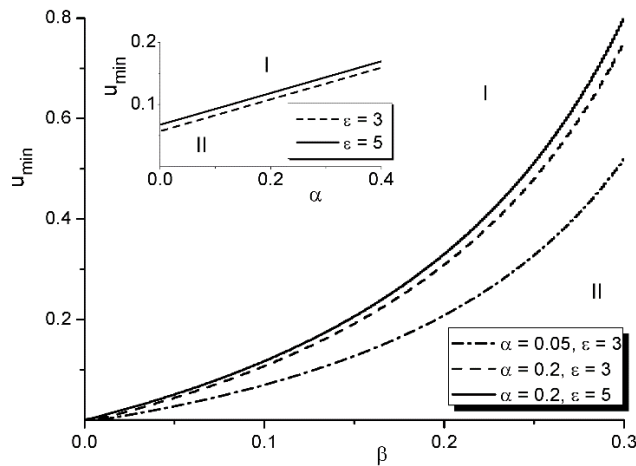


Рис. 2. Залежності мінімального значення сили анізотропії u_{\min} від ширини тераси багатошарових структур адсорбату β : область I визначає значення параметрів системи, коли концентрація адсорбату на даному рівні не перевищує значення x_{\max} . На вставці наведено залежності $u_{\min}(\alpha)$ при $\beta = 0,1$.²

У наступному розділі буде окремо досліджено однорідну систему при $\nabla x = 0$ з метою встановлення умов реалізації переходів плазма–конденсат першого роду у детерміністичній і стохастичній системах, та встановлення впливу періодичних осциляцій та флюктуацій сили анізотропії у переходах 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.

3. СТАЦІОНАРНІ СТАНИ ТА ПЕРЕХОДИ ПЕРШОГО РОДУ

Основною метою даного розділу є дослідження залежності стаціонарної концентрації адсорбату на виділеному шарі багат шарової системи від основних керуючих параметрів системи та встановлення умов реалізації переходів першого роду в системі «плазма–конденсат», еволюція якої задається рівнянням (12). Для цього розглянемо випадок однорідної системи, поклавши $\nabla \cdot \mathbf{J} = 0$.

3.1. Бістабільність детермінованої системи

Спочатку сконцентруємо нашу увагу на детерміністичних моделях з $\sigma^2 = 0$ та $\Sigma = 0$, без наявності осциляцій сили анізотропії u , покладаючи $A = 0$ та $\omega = 0$. Стаціонарні стани однорідної системи одержуються з умови $\partial_t x = 0$. Отже, залежність стаціонарної концентрації адсорбату від керуючих параметрів системи, що зводяться до коефіцієнта адсорбції α , енергії взаємодії адсорбату ε та сили анізотропії вертикального переходу адатомів між шарами u , викликаної дією підведеного до підкладинки електричного поля, визначається з розв'язків рівняння $f(x) = 0$. У подальших розрахунках зафіксуємо $\beta = 0,1$. Спершу прослідкуємо зміну стаціонарної концентрації адсорбату x_{st} від коефіцієнта адсорбції α при різних значеннях сили анізотропії вертикального переходу адатомів між шарами u та енергії взаємодії адсорбату ε . Відповідну залежність $x_{st}(\alpha)$ подано на рис. 3. З рисунка видно, що при малому значенні сили анізотропії u в системі зі збільшенням коефіцієнта адсорбції α реалізується перехід першого роду (див. суцільну криву на рис. 3 при $u = 0,5$). Тобто є певна область значень коефіцієнта адсорбції, коли можливим є три значення стаціонарної концентрації. Так, зі збільшенням коефіцієнта адсорбції від нуля при досягненні певного критичного значення $\alpha = \alpha_1$ стаціонарна концентрація адсорбату стрибком приймає підвищене значення. Навпаки, при зменшенні коефіцієнта адсорбції при досягненні критичного значення $\alpha = \alpha_2$ стаціонарна концентрація адсорбату стрибком набуває заниженого значення. Стрілками

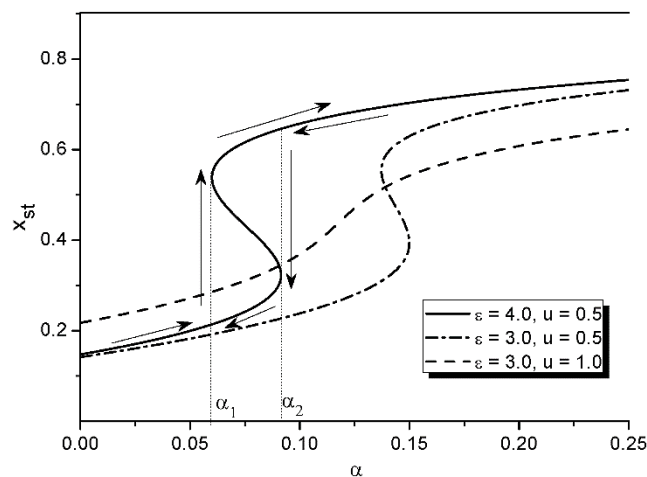


Рис. 3. Залежність стаціонарної концентрації адсорбату x_{st} від коефіцієнта адсорбції α при різних значеннях сили анізотропії вертикального переходу адатомів між шарами u та енергії взаємодії адсорбату ϵ при $\beta = 0,1$.³

наведено відповідні переходи. Зменшення значення енергії взаємодії адсорбату ϵ вимагає більших значень коефіцієнта адсорбції α , коли досліджувана система є бістабільною; ширина інтервалу (α_1, α_2) існування трьох стаціонарних станів звужується (пор. суцільну та штрих-пунктирну криві на рис. 3). Збільшення інтенсивності анізотропії u при інших фіксованих параметрах системи приводить до виродження інтервалу (α_1, α_2) , коли реалізуються переходи першого роду (пор. суцільну та штрихову криві на рис. 3). Таким чином, при великих значеннях u в системі завжди існує лише один розв'язок $x_{st}(\alpha)$. Слід зауважити, що значення стаціонарної концентрації адсорбату тут обмежене максимальним значенням $x_{\max}(\beta)$ (див. рис. 2).

Далі розглянемо залежність стаціонарного значення концентрації адсорбату x_{st} на досліджуваному шарі багат шарової системи від сили анізотропії вертикальної дифузії адатомів u при зміні коефіцієнта адсорбції α та фіксованих інших параметрах системи. Результати відповідних розрахунків подано на рис. 4. Тут, при малих значеннях коефіцієнта адсорбції α (див. панель $\alpha = 0,04$ на рис. 4) та малих значеннях сили анізотропії вертикальної дифузії $u_{\min} < u < u_1$ в системі реалізується три стаціонарні стани. При цьому один стан характеризується малим значенням концентрації (розбавлений стан або фаза плазми), а два інші стани характеризуються великим значенням концентрації: проміжний стан є не стійким, тоді як стан з найбільшим значенням концентрації (щільна фаза) є стійким. При $u = u_1$ відбувається перехід першого роду і при $u > u_1$ реалізується лише одне стаціонарне значення, незалежно від u . При збільшенні коефіцієнта

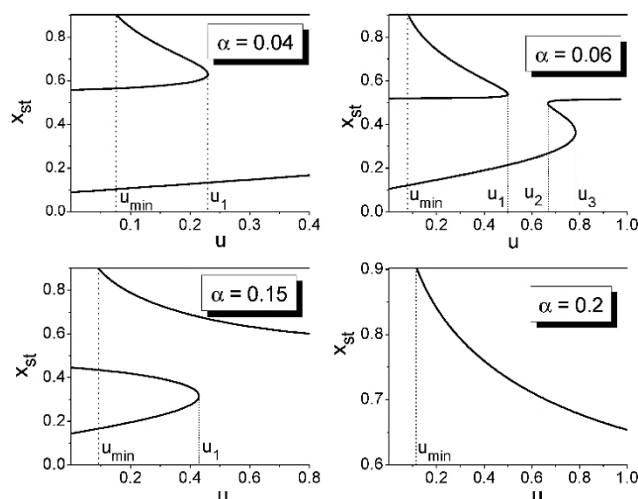


Рис. 4. Залежність стаціонарної концентрації адсорбату x_{st} від сили анізотропії вертикального переходу адатомів між шарами u при різних значеннях коефіцієнта адсорбції α при фіксованих $\varepsilon = 4,0$ та $\beta = 0,1$.⁴

адсорбції маємо більш складну залежність стаціонарної концентрації від сили анізотропії вертикальної дифузії адатомів u (див. панель $\alpha = 0,06$ на рис. 4). Тут три стаціонарні стани реалізуються як при малих $u < u_1$, так і при підвищених значеннях сили анізотропії $u_1 < u < u_3$. При цьому, збільшення α приводить до збільшення u_1 . Таким чином, маємо три точки фазового переходу: u_1 , u_2 та u_3 . Подальше збільшення коефіцієнта адсорбції α приводить до трансформації залежності $x_{st}(u)$, коли один стан характеризується великим значенням концентрації адсорбату (щільна фаза), а два інших відповідають малій концентрації адсорбату (див. панель $\alpha = 0,15$ на рис. 4). Нарешті, при досить великих значеннях коефіцієнта адсорбції α маємо однозначну залежність $x_{st}(u)$ (див. панель $\alpha = 0,2$ на рис. 4) з $x_{st}(u) > 0,5$ (щільна фаза). Як і у випадку залежності $x_{st}(\alpha)$ тут стаціонарне значення концентрації адсорбату обмежене значенням $x_{\max}(\beta)$, тоді як мінімальне значення сили анізотропії, коли формуватимуться багатошарові структури з фіксованою шириною тераси, визначену через β , дається величиною $u_{\min}(\alpha)$ (див. рис. 2).

Одержані залежності стаціонарної концентрації від коефіцієнта адсорбції $x_{st}(\alpha)$ та сили анізотропії вертикальної дифузії $x_{st}(u)$ дають можливість встановити вигляд фазової діаграми, що обмежує область існування трьох стаціонарних станів (область бістабільності). Для розрахунку відповідної фазової діаграми $\alpha(u)$ для кожного значення сили анізотропії вертикальної дифузії u визначалися критичні значення параметра адсорбції α_1 та α_2 із відповідної залежності $x_{st}(\alpha)$ при фіксованих значеннях енергії взаємодії адсорбату ε . Від-

повідні результати подано на рис. 5. Звідси випливає, що вся площина (α, u) розділена на шість різних областей чотирма кривими. Тут суцільні криві (бінодали) визначають параметри системи $(\alpha_1(u)$ та $\alpha_2(u))$, коли досліджувана система є бістабільною, що реалізується між ними. Штрих-пунктирна крива відповідає залежності $u_{\min}(\alpha)$ (див. рис. 2). Вона обмежує область бістабільності зліва значеннями параметрів системи, коли виконується співвідношення $x_{st} \leq x_{\max}$. Всередині області I співвідношення $x_{st} \leq x_{\max}$ не виконується і фізично реалізованого стаціонарного значення концентрації адсорбату не існує. В областях III та IV фазової діаграми $\alpha(u)$ система є монотабільною, з одним стаціонарним станом не залежно від значень параметрів системи; в областях II, V та VI реалізується більше ніж один стаціонарний стан.

Варто відзначити, що область бістабільності системи, обмежена суцільними кривими (знизу та зверху) та штрих-пунктирною кривою (зліва), обмежена справа значенням u_3 . Більш того, детальний аналіз нижньої бінодали дозволяє визначити характерні значення коефіцієнта адсорбції: $\alpha_{c1} = \alpha(u_1) = \alpha(u_3)$ та $\alpha_{c2} = \alpha(u_2)$, де значення u_2 може бути визначене з рівняння $\partial_u \alpha = 0$. При фіксованому α , взятому з інтервалу $\alpha_{c1} < \alpha < \alpha_{c2}$, збільшення сили анізотропії u приводить до реверсивної картини фазових переходів першого роду (див. залежність $x_{st}(u)$ при $\alpha = 0,06$ на рис. 4).

На вставці на рис. 5 наведено характер зміни області бістабільності шляхом варіювання енергії взаємодії адсорбату ε та ширини тераси багат шарових структур β . Тут суцільні криві відповідають

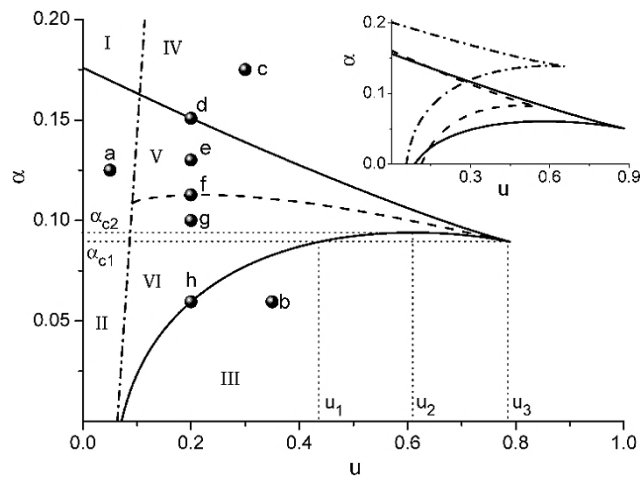


Рис. 5. Фазова діаграма $\alpha(u)$ існування області бістабільності при $\varepsilon = 3,5$ та $\beta = 0,1$. На вставці наведено діаграму $\alpha(u)$ при: $\varepsilon = 4,0$ та $\beta = 0,1$ (суцільні криві); $\varepsilon = 3,0$ та $\beta = 0,1$ (штрих-пунктирні криві); $\varepsilon = 3,0$ та $\beta = 0,15$ (штрихові криві).⁵

$\varepsilon = 4,0$, $\beta = 0,1$; штрих-пунктирні криві одержано при $\varepsilon = 3,0$, $\beta = 0,1$; штрихові криві відповідають значенням $\varepsilon = 3,0$, $\beta = 0,15$. З одержаних даних випливає, що зі збільшенням β область бістабільності звужується як по значеннях коефіцієнта адсорбції α , так і по значеннях сили анізотропії u (пор. штрих-пунктирні та штрихові криві на вставці на рис. 5). Збільшення сили взаємодії приводить до розширення області бістабільності по значеннях сили анізотропії та до звуження по коефіцієнту адсорбції та появи інтервалу $(\alpha_{c1}, \alpha_{c2})$ реалізації реверсивних фазових переходів першого роду.

Для детального аналізу станів системи проаналізуємо характер зміни ефективного потенціалу $V(x) = -\int f(x) dx$ в кожній області фазової діаграми $\alpha(u)$ з рис. 5, а також при значеннях α та u , що відповідають бінодалям (суцільні криві на рис. 5). При цьому, положення екстремумів потенціалу $V(x)$ відповідають стаціонарним станам: мінімуми $V(x)$ відповідають стійким станам, максимуми — нестійким. Розраховані потенціали в точках $a-h$ з рис. 5 наведено на рис. 6. Так, в області II система характеризується одним стійким і одним нестійким станами (один мінімум і один максимум залежності $V(x)$ в точці a на рис. 6, a). Області III і IV відповідають параметрам системи, коли система характеризується єдиним стаціонарним станом з низькою та високою густиною адсорбату, відповідно (див. панелі b та c на рис. 6 для точок b та c на рис. 5). Фіксуючи силу анізотропії $u < u_3$ зі зменшенням коефіцієнта адсорбції α , ми переходимо з області IV одного стану високої щільності (точка c) до області бістабі-

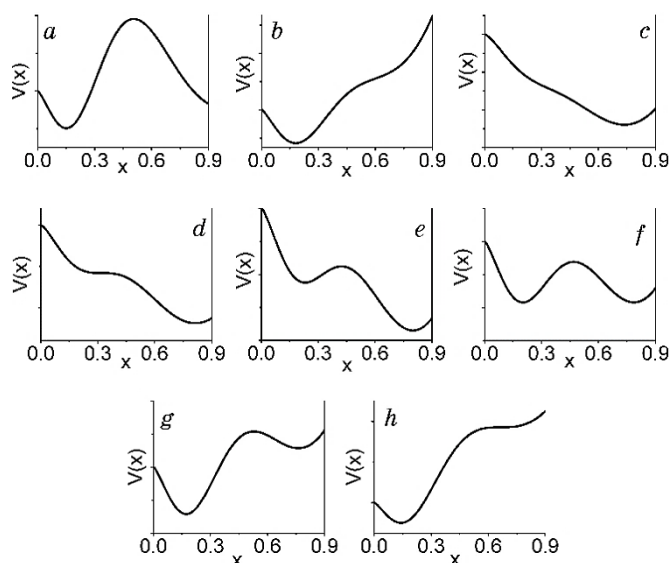


Рис. 6. Ефективний потенціал $V(x)$ при $\varepsilon = 3,5$, $\beta = 0,1$ і різних значеннях α та u .⁶

льності V (точка e) через бінодаль (точка d). У цьому випадку з'являється додатковий мінімум потенціалу $V(x)$ і система перебуває у стані високої щільності (мінімум при великих x глибше). Два мінімуми потенціалу $V(x)$ стають еквівалентними при значеннях параметрів системи, що відповідають спинодалі (штрихова крива на рис. 5), що представлено на панелі f на рис. 6). Подальше зниження коефіцієнта адсорбції приводить до переходу бістабільної системи в стан низької щільності (див. панель g на рис. 6). Перехід від області бістабільності VI до області існування єдиного стаціонарного значення III відбувається через перетин бінодалі (точка h), коли вироджується мінімум потенціалу при великих x .

3.2. Індуковані зовнішнім шумом переходи першого роду

Відомо, що внутрішні флюктуації, які відповідають флюктуаційно-дисипативній теоремі, або зовнішні флюктуації можуть індукувати фазові переходи в складних системах (див., наприклад, [63, 64, 71]). У цьому розділі ми встановимо вплив уведених зовнішніх флюктуацій напруженості електричного поля з інтенсивністю σ^2 на стійкість однорідного стану x_{st} , який визначається з рівняння

$$f(x) + \sigma^2 g(x) d_x g(x) = 0. \tag{13}$$

Біфуркаційну діаграму $x_{st}(\sigma^2)$ при $\varepsilon = 3,5$, $u = 1,0$ та $\alpha = 0,1$ наведено на вставці на рис. 7. З одержаної залежності випливає, що при збільшенні інтенсивності флюктуацій σ^2 відбувається перехід пер-

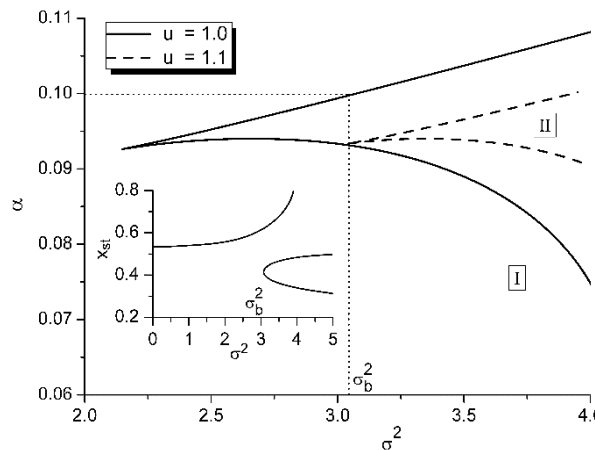


Рис. 7. Фазова діаграма однорідної системи при $\varepsilon = 3,5$ та різних значеннях сили анізотропії u . На вставці наведено біфуркаційну діаграму $x_{st}(\sigma^2)$ при $u = 1,0$ і $\alpha = 0,1$.⁷

шого роду при $\sigma^2 = \sigma_b^2$. Варіюючи коефіцієнт адсорбції α , можна встановити критичне значення інтенсивності шуму, що відповідає умові реалізації такої біфуркації. Відповідна фазова діаграма $\alpha(\sigma^2)$ показана в якості основного графіка на рис. 7 для різних значень сили анізотропії u . Тут в області I система характеризується єдиним стаціонарним станом x_{st} ; в області II (всередині відповідної обмеженої області) система є бістабільною. Видно, що збільшення сили анізотропії u вимагає підвищених значень інтенсивності її флюктуацій σ^2 для реалізації переходу першого роду. Отже, конкуренція детермінованої та стохастичної частин зовнішнього потоку, індукованого електричним полем поблизу підкладинки, керує фазовими переходами першого роду в даній системі.

3.3. Переходи від стану з низькою концентрацією до стану з високою концентрацією у стохастичній бістабільній системі

У цьому розділі нами буде 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 підкладинки електричного поля. В рамках узагальненого одношарового моделювання буде досліджено ефекти пов'язані з періодичними коливаннями та флюктуаціями напруженості електричного поля. Основною метою розділу є встановлення особливостей зовнішнього впливу на середній час переходу від стану з низькою густиною адсорбату до стану з високою концентрацією адсорбату у моделі, що описується потенціалом $V(x) = -\int f(x)dx$.

Фазову діаграму, що ілюструє вплив напруженості електричного поля на стани системи, наведено на рис. 8. Тут всередині області II система є бістабільною. З рисунка видно, що збільшення напруженості електричного поля звужує область бістабільності по коефіцієнта адсорбції α та потребує більших значень енергії взаємодії адсорбату ε для її реалізації. Потенціал $V(x)$, показаний на вставці відповідає спинодалі та одержано при $\alpha = 0,064$, $\varepsilon = 4,0$ та $u = 0,7$ (чорна точка всередині клину на рис. 8). З аналізу однорідного рівняння (12) випливає, що при $x = x_0$, коли $\gamma(x_0) = 0$ вплив електричного поля біля підкладинки на концентрацію адсорбату зникає, і рівноважна система описується лише адсорбцією, десорбцією та ізотропною вертикальною дифузією. При цьому x_0 не є поглинальною 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 «Броуніву частинку», що знаходиться в одному мінімумі потенціалу, до максимуму потенціалу, і у випадку, коли періодична сила

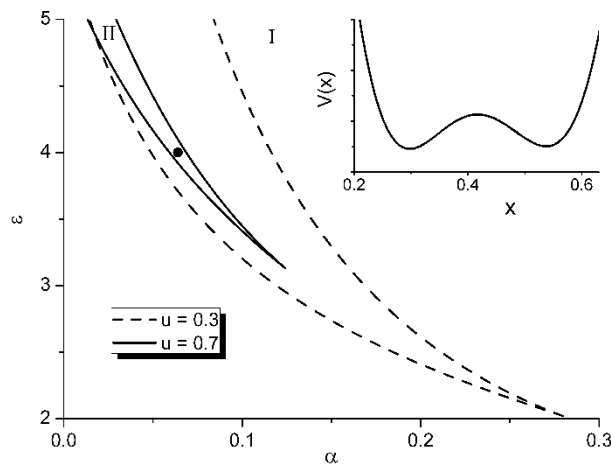


Рис. 8. Фазова діаграма системи «плазма–конденсат», що описується рівнянням $\partial_t x = f(x)$: I — область моностабільності; II — область бістабільності.⁸

синхронізується зі стохастичною, остання перекидає «Броуніву 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 будемо 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 Ляпунгева (12) з ∇x з часом інтегрування $\Delta t = 10^{-3}$. Такі розрахунки дають суттєве прискорення (порядку 500 разів) в одержанні результатів, порівняно із відповідними розрахунками на процесорі для даної конкретної задачі.

На рисунку 9 наведено еволюцію концентрації адсорбату (одна реалізація представлена сірим кольором) і середньої концентрації адсорбату, усередненої за 10^4 реалізаціями (чорна крива). В усіх симуляціях у якості початкових умов для концентрації адсорбату було обрано мінімум потенціалу $V(x)$, який відповідає стаціонарному стану з низькою густиною. З одержаних результатів випливає, що протягом еволюції системи комбінований ефект впливу періодичної та стохастичної сил приводить до переходу системи в стаціонарний стан з високою концентрацією адсорбату. Цей перехід відбувається в середньому за час t_p , коли дисперсія $\langle(dx)^2\rangle$ для ансамблю траєкторій спадає до нуля після максимального значення (див. вставку на рис. 9).

Далі будемо досліджувати вплив періодичного навантаження

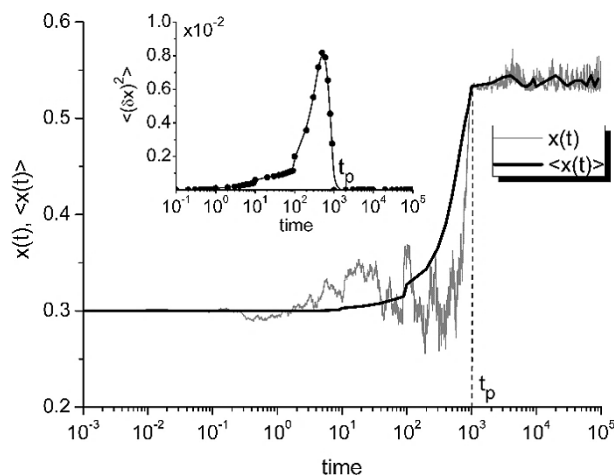


Рис. 9. Еволюція концентрації адсорбату (одна реалізація представлена сірим кольором) та середньої концентрації, усередненої за 10^4 реалізаціями (чорна крива). На вставці наведено часову залежність дисперсії. Результати одержано при $A = 0,06$, $\omega = 10^{-3}$ та $\sigma^2 = 0,05$.⁹

(амплітуди періодичних коливань A та їх частоти ω) та флюктуацій інтенсивності σ^2 на середній час (mpt) переходу зі стану з низькою густиною адсорбату (розріджена фаза), що відповідає мінімуму потенціалу $V(x)$ з малим значенням x до стану з високою густиною адсорбату (щільна фаза), що відповідає мінімуму $V(x)$ 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 флюктуацій з $\sigma^2 = 10^{-5}$. Залежності середнього часу переходу mpt з розрідженої до щільної фази від амплітуди періодичної сили A та різних значеннях частоти коливань ω наведено на рис. 10, *a*. Залежності mpt від частоти ω при різних значеннях амплітуди A представлені на рис. 10, *б*.

З рисунку 10, *a* 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 ω . Зі збільшенням амплітуди A значення часу переходу mpt різко зменшується та набуває незмінних значень при великих значеннях A . Збільшення частоти періодичної сили ω потребує підвищених значень амплітуди A для переходу до щільної фази, з одного боку, та приводить до зменшення часу переходу при великих значеннях амплітуди A , з іншого боку. Залежність $mpt(\omega)$, представлена на рис. 10, *б* має більш складну структуру. Тут спостерігається певний ви-

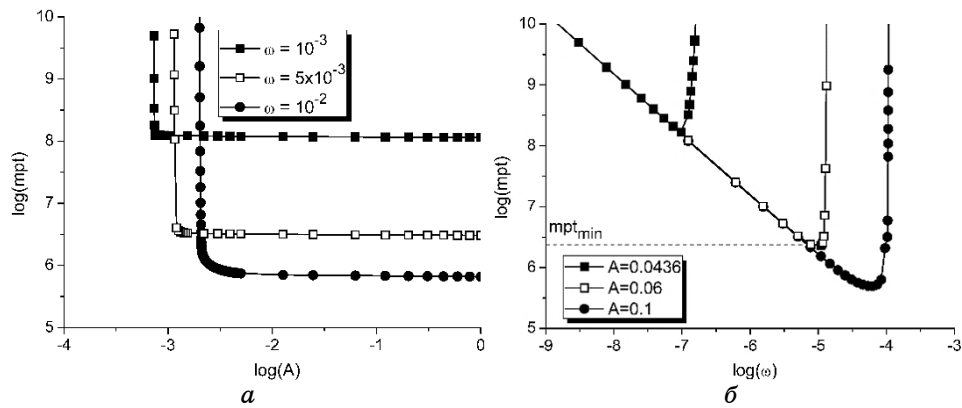


Рис. 10. Залежності середнього часу переходу mpt з розрідженої до щільної фази при $\sigma^2 = 10^{-5}$ від а) амплітуди періодичної сили A та різних значеннях частоти коливань ω ; б) частоти ω за різних значень амплітуди A .¹⁰

падок 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 ω 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 флюктуацій σ^2 та різних значень амплітуди A та частоти ω періодичної сили. Відповідні залежності $mpt(\sigma^2)$ при $A = 0,06$ та різних значеннях частоти ω наведено на рис. 11, а. З рисунка видно, що при малих значеннях частоти періодичної сили ω збільшення інтенсивності флюктуацій дещо зменшує час переходу (див. криву з заповненими квадратами при $\omega = 0,001$ на рис. 11, а). Коли σ^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 σ^2 діє у спосіб, наведений на рис. 10, б: mpt зменшується, досягає мінімального значення mpt_{\min} і потім збільшується. При $\sigma^2 < \sigma_{\max}^2$ значення mpt_{\min} слабо збільшується з σ^2 . При великих значеннях частоти періодичної сили перехід від розбавленої до щільної фази відбувається при підвищених значеннях інтенсивності флюктуацій. У вузькому інтервалі значень частоти залежність середнього часу переходу системи з розбавленого до щільного стану від інтенсивності флюктуацій напруженості елект-

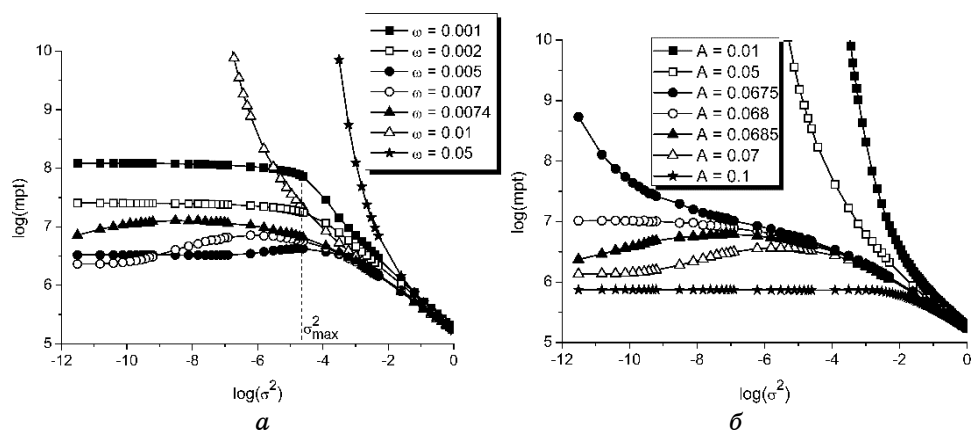


Рис. 11. Залежності середнього часу переходу з розбавленої до щільної фази від інтенсивності флюктуацій σ^2 при: а) $A = 0,06$ та різних значеннях частоти ω періодичної сили; б) $\omega = 0,01$ та різних значеннях амплітуди A періодичної сили.¹¹

ричного 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 флюктуації повертають цю частину назад в мінімум потенціалу, що відповідає розбавленій фазі. З подальшим збільшенням інтенсивності флюктуацій шум починає відігравати визначальну роль в динаміці системи та переводить систему до щільної фази через потенціальний бар'єр.

На рисунку 11, б представлено залежності середнього часу переходу від інтенсивності флюктуацій 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 флюктуацій 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 ; в) при підвищених значеннях A флюктуації визначають динаміку системи при великих значеннях їхньої інтенсивності.

4. УМОВИ ФОРМУВАННЯ СТІЙКИХ ВІДОКРЕМЛЕНИХ ПОВЕРХНЕВИХ СТРУКТУР

Метою даного розділу є встановлення умов формування відокремлених структур адсорбату на виділеному шарі багаточислової системи при конденсації в системі «плазма–конденсат». Для цього нами буде проведено лінійний аналіз на стійкість однорідного стаціонарного стану x_{st} до неоднорідних збурень з метою визначення області значень основних параметрів системи, коли просторові збурення приведуть до нестійкості однорідного стану. Будемо розглядати випадок відсутності періодичних змін в напруженості підведеного до підкладинки електричного поля, поклавши $A = 0$ та $\omega = 0$.

4.1. Дисперсійне співвідношення

В рамках стандартної процедури лінійного аналізу системи на стійкість розглянемо відхилення концентрації адсорбату від стаціонарного однорідного значення: $\delta x = x - x_{st}$, де x_{st} визначається з рівняння (13). Розглядаючи відхилення δx як малий параметер, проведемо лінеаризацію рівняння (12) шляхом розвинення в ряд реакційної складової $R(x) = f(x) + \sigma^2 g(x) d_x g(x)$ в околі стаціонарного рівноважного стану x_{st} :

$$R(x) \approx R(x_{st}) + \left(\frac{dR(x)}{dx} \right) \Big|_{x=x_{st}} \delta x. \quad (14)$$

В рамках стандартного аналізу на стійкість відхилення концентрації адсорбату x від стаціонарного значення x_{st} приймемо у вигляді

$$\delta x = x - x_{st} \propto \exp(\lambda(k)t + ikr), \quad (15)$$

де k — хвильове число, а $\lambda(k)$ — показник стійкості однорідних стаціонарних станів до неоднорідних збурень. Тоді похідні від зміщення $\delta x(t, r)$ за часом і простором визначаються наступним чином:

$$\frac{\partial}{\partial t} \delta x(t, r) = \lambda(k) \delta x, \quad \frac{\partial}{\partial r} \delta x(t, r) = ik \delta x. \quad (16)$$

Таким чином, використовуючи зв'язки (16) і рівняння (14), рівняння еволюції (12) для відхилення δx від стаціонарного однорідного стану набуває наступного вигляду:

$$\lambda(k) \delta x = R(x_{st}) + \left. \frac{dR(x)}{dx} \right|_{x=x_{st}} \delta x - D_{\perp} k^2 \left[1 - \varepsilon \gamma(x_{st}) \{ 1 + (1 - \rho_0^2 k^2)^2 \} - \frac{\Sigma}{2} \varepsilon \left. \frac{d^2 \gamma(x)}{dx^2} \right|_{x=x_{st}} \right] \delta x, \quad (17)$$

де $\kappa = \kappa L_D$ — безрозмірне хвильове число. Враховуючи те, що стаціонарне однорідне значення концентрації адсорбату x_{st} визначається з умови $R(x) = 0$, в результаті маємо $R(x_{st}) = 0$. Беручи до уваги $\delta x \neq 0$, скорочуємо зліва і справа на δx і приходимо до рівняння на показник стійкості однорідного стаціонарного стану до неоднорідних збурень $\lambda(\kappa)$ (дисперсійне співвідношення) у вигляді:

$$\lambda(\kappa) = \lambda(0) - D_{\perp} \kappa^2 \left[1 - \varepsilon \gamma(x_{st}) \{1 + (1 - \rho_0^2 \kappa^2)^2\} - \frac{\Sigma}{2} \varepsilon \frac{d^2 \gamma(x)}{dx^2} \Big|_{x=x_{st}} \right], \quad (18)$$

$$\text{де } \lambda(0) = \frac{dR(x)}{dx} \Big|_{x=x_{st}}, \quad \gamma(x_{st}) = \mu(x_{st}) (\sqrt{x_{st}} + 1 / 2\beta)^2.$$

Згідно зі стандартною теорією, маємо, що у випадку $\lambda(\kappa) < 0$ всі відхилення від однорідного стану з часом експоненційно зменшуються, і адсорбат однорідно заповнює досліджуваний шар. У випадку, коли $\lambda(\kappa) > 0$ при $\kappa \in (0, \kappa_c)$ та $\lambda(\kappa) < 0$ при $\kappa \in (\kappa_c, \infty)$ буде реалізуватися сценарій фазового розшарування. Натомість, коли $\lambda(\kappa) > 0$ при $\kappa \in (\kappa_1, \kappa_2)$, в стаціонарному режимі в системі будуть існувати просторові структури адсорбату, що характеризуватимуться періодом (середньою відстанню розташування) $\kappa = \kappa_0$: $\kappa_1 < \kappa_0 < \kappa_2$, яке визначатиме максимальне значення показника стійкості та визначається з рівняння: $d_{\kappa} \lambda(\kappa) = 0$. Оскільки величина $\rho_0 \ll 1$ ($\rho_0 = r_0 / L_D$, де радіус взаємодії атома $r_0 \approx 10^{-9}$ м, а дифузійна довжина для більшості металів і напівпровідників $L_D \approx 10^{-6}$ м, $\rho_0 \approx 10^{-3}$), то, поклавши $\rho_0^4 \kappa^4 \approx 0$, рівняння (18) можна записати у спрощеному вигляді:

$$\lambda(\kappa) = \lambda(0) - D_{\perp} \kappa^2 \left[1 - 2\varepsilon \gamma(x_{st}) (1 - \rho_0^2 \kappa^2) - \frac{\Sigma}{2} \varepsilon \frac{d^2 \gamma(x)}{dx^2} \Big|_{x=x_{st}} \right]. \quad (19)$$

З рівняння на показник стійкості (19) випливає, що флюктуації поверхневого потоку адсорбату сприятимуть стабілізації системи внаслідок $d_{xx}^2 \gamma(x) \Big|_{x=x_{st}} < 0$. Складова з κ^4 також стабілізує систему за рахунок $\gamma(x_{st}) > 0$. З іншого боку, перший член в правій частині в рівнянні (19) має бути нег'ятивним для виконання умови $\kappa_1 > 0$. З аналізу рівняння (19) випливає, що в границі великих κ показник стійкості $\lambda(\kappa)$ буде від'ємним. Таким чином, необхідними та достатніми умовами для формування відокремлених структур адсорбату в досліджуваному моделі «плазма-конденсат» є: 1) стійкість однорідного стаціонарного стану x_{st} , що визначається значенням $\lambda(0)$ та досягається умовою $\lambda(0) < 0$; 2) існування просторової нестійкості $\lambda(\kappa) > 0$ в певному обмеженому інтервалі хвильових чисел $\kappa > 0$. Отже, варіюючи параметри системи та розраховуючи залежність по-

казника стійкості від хвильового числа (19) можна знайти умови виникнення просторових нестійкостей. Такий підхід дозволяє одержати фазову діаграму, що ілюструватиме область параметрів системи, коли можливим буде формування відокремлених структур адсорбату на досліджуваному шарі багат шарової системи «плазма–конденсат».

4.2. Умови контролювання процесами структурування поверхні в детерміністичній системі

Для дослідження детерміністичного моделю будемо вважати, що інтенсивність флюктуацій напруженості електричного поля σ^2 є малою величиною. У такому разі вплив зовнішнього електричного поля будемо описати середнім значенням, поклавши у подальшому розгляді у рівнянні (12) $\sigma^2 = 0$. Буде розглянуто чисто детерміністичну систему, враховуючи флюктуації потоку адсорбату малими, поклавши $\Sigma = 0$. Результати щодо області реалізації відокремлених структур адсорбату подано на рис. 12 у площині сила анізотропії вертикальної дифузії — коефіцієнт адсорбції (u, α). При значеннях параметрів системи ззовні обмеженої області (область II) з плином часу адсорбат однорідно покриватиме досліджуваний шар, і жодних відокремлених структур адсорбату не виділиться. Типову залежність показника стійкості в області реалізації однорідного розподілу адсорбату (в області II діаграми рис. 12) подано на рис. 13, а. Видно, що при всіх значеннях хвильового числа k показник стійкості приймає від'ємні значення. При значеннях параметрів в середині обмеженої області (область I) з плином часу на досліджуваному шарі будуть формуватися відокремлені структури адсорбату. Типову залежність показника стійкості в області I діаграми рис. 12 представлено на рис. 13, б. Тут показник стійкості $\lambda(k)$ приймає позитивні значення в обмеженому інтервалі хвильових чисел (k_1, k_2). Це свідчить про те, що в системі будуть формуватися просторові збурення (структури), період розташування яких у r -просторі прийматиме значення від $r_1 \propto 1/k_2$ до $r_2 \propto 1/k_1$. Аналізуючи одержані залежності (u, α) при різних ε перш за все слід зазначити, що у випадку ізотропної вертикальної дифузії (відсутності електричного поля біля підкладинки, що задовольняється умовою $u = 0$) незалежно від коефіцієнта адсорбції α та енергії взаємодії адсорбату ε реалізація відокремлених структур є неможливою. Проаналізуємо детально залежність (u, α) при $\varepsilon = 3,3$ (див. суцільну криву на рис. 12).

Область реалізації просторових структур (область I) є обмеженою так, що мінімальне можливе значення коефіцієнта адсорбції α_{\min} прямує до нуля при прямуванні до нуля сили анізотропії вертикальної дифузії. При цьому також існує верхня межа в значеннях як коефіцієнта адсорбції, що визначається значенням α_{\max} і сили анізот-

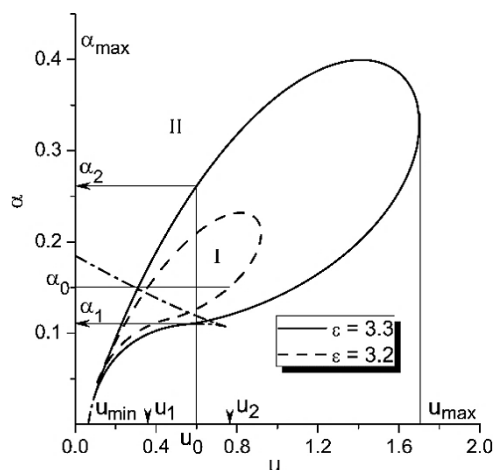


Рис. 12. Діаграма стійкості однорідного стаціонарного стану до неоднорідних збурень: при значеннях параметрів системи з області I будуть формуватися відокремлені структури адсорбату; область II характеризується однорідним розподілом адсорбату на досліджуваному шарі.¹²

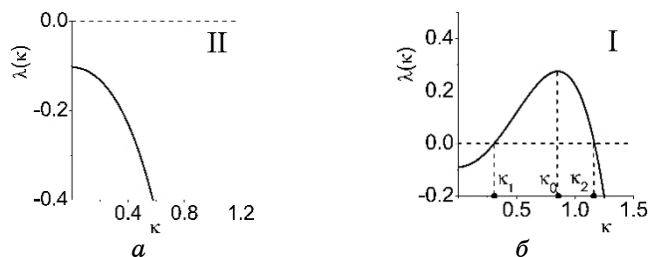


Рис. 13. Залежності показника стійкості від хвильового числа: а) в області II на діаграмі рис. 12; б) в області I на діаграмі рис. 12.¹³

ропії u_{\max} . Отже, фіксуючи значення сили анізотропії вертикальної дифузії (напруженість підведеного до підкладки електричного поля) значенням $u = u_0$ та збільшуючи коефіцієнт адсорбції (тиск всередині камери) α маємо наступні структурні перетворення в морфології досліджуваного шару. При низькому тискові плазми (малі α) адсорбат однорідним чином покриває шар з малою концентрацією (область II нижче суцільної кривої). При $\alpha > \alpha_1$ в області I адатоми здатні формувати відокремлені структури. Подальше збільшення коефіцієнта адсорбції приводить до переходу з області I в область II при $\alpha = \alpha_2$ і на поверхні шару реалізується однорідний розподіл адсорбату високої концентрації. Це означає, що інтенсивність процесів адсорбції суттєво переважає процеси десорбції та подавляє анізотропію вертикальної дифузії адатомів.

Таким чином, збільшення коефіцієнта адсорбції приводить до реверсивного характеру упорядкування (структурування) на досліджуваному шарі. При цьому, у випадку $\alpha < \alpha_1$ 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 коефіцієнта адсорбції $\alpha > \alpha_2$ реалізується процес росту поверхні шар за шаром без можливості структурування адсорбату. Аналогічний ефект реверсивності спостерігається і при збільшенні/зменшенні напруженості підведеного до підкладки електричного поля u при сталому значенні коефіцієнта адсорбції $\alpha = \alpha_0$. Тут при малих значеннях сили анізотропії ($u < u_1$) її недостатньо для того, щоб ініціювати процеси формування структур, а при великих $u > u_2$ сильна анізотропія приводить до суттєвого зменшення концентрації адсорбату на даному шарі, а отже неможливим є досягання необхідного пересичення шару адсорбатом, щоб формувалися відокремлені структури. Порівнюючи суцільну та штрихову криві на рис. 12 можна бачити, що зменшення енергії взаємодії адсорбату ϵ приводить до звуження області реалізації стійких просторових структур.

На рисунку 14 наведено зміну критичних значень параметра β , що визначає ширину тераси пірамідальних багат шарових структур при зміні сили анізотропії u . З рисунку випливає, що досліджуваний модель уможливує проводити опис процесів формування пірамідальних структур з різним значенням ширини тераси β . При цьому для формування більш гладких структур з малим значенням

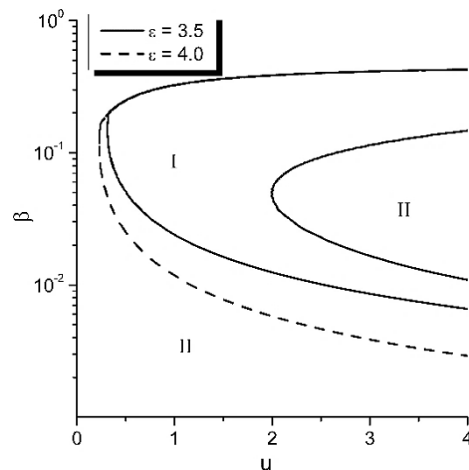


Рис. 14. Діаграма стійкості при $\alpha = 0,2$. В області I формуються стаціонарні просторові структури; в області II адсорбат однорідно покриває поверхню.¹⁴

ширини тераси необхідним є висока напруженість електричного поля біля підкладинки.

Далі розглянемо залежності хвильових чисел κ_1 , κ_2 , які визначають границі інтервалу позитивних значень коефіцієнта стійкості λ , та κ_0 , який визначає середній період розташування просторових збурень (відокремлених поверхневих структур) від сили анізотропії вертикальної дифузії u , коефіцієнта адсорбції α та енергії взаємодії адсорбату ε . Відповідні залежності подано на рисунках 15, а, б, в відповідно. Спочатку розглянемо детально залежність хвильових чисел від сили анізотропії вертикальної дифузії при фіксованих інших параметрах системи (див. рис. 15, а). Звідси випливає, що при $u < u_1^c$ вся залежність $\lambda(\kappa)$ лежить нижче рівня $\lambda = 0$. При $u > u_1^c$ показник стійкості стає позитивним в інтервалі (κ_1, κ_2) , який збільшується зі зростанням u . Тут κ_0 збільшується з u , означаючи утворення нових островів адсорбату на шарі, що приводить до зменшення середньої відстані між

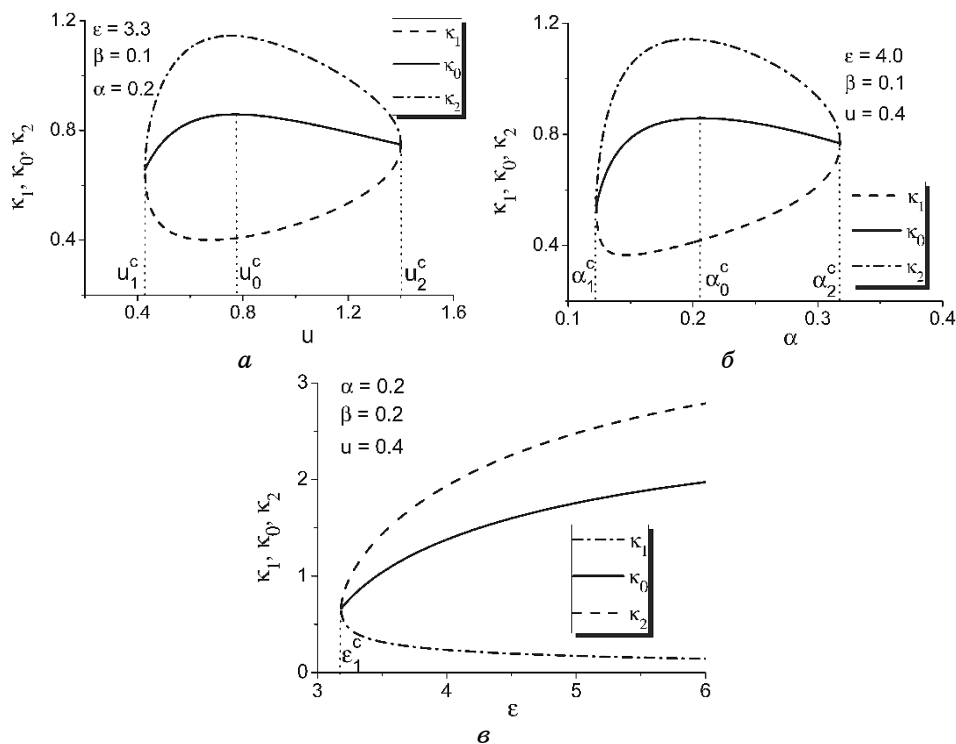


Рис. 15. Залежності хвильових чисел κ_1 , κ_2 , які визначають границі інтервалу позитивних значень коефіцієнта стійкості λ , та κ_0 , який визначає середній період просторових збурень (відокремлених поверхневих структур) від а) сили анізотропії вертикальної дифузії u ; б) коефіцієнта адсорбції α ; в) енергії взаємодії адсорбату ε .¹⁵

ними в r -просторі. При $u > u_0^c$ відстань між кластерами адсорбату починає зменшуватися, що означає утворення меншої кількості островів адсорбату з більшим періодом їх розташування за рахунок анізотропії в реакціях перенесення адсорбату між шарами.

У випадку $u > u_2^c$ показник стійкості стає негативним, а сильна анізотропія приводить до того, що в стаціонарному режимі реалізація структур адсорбату є неможливою. Залежності хвильових чисел κ_1 , κ_2 та κ_0 від коефіцієнта адсорбції α , подані на рис. 15, б, є аналогічними до попередніх. Реалізація відокремлених структур можлива лише при значеннях α з інтервалу (α_1, α_2) . Зменшення залежності $\kappa_0(\alpha)$ тут означає збільшення лінійного розміру островів адсорбату. Залежність хвильових чисел від енергії взаємодії адсорбату ε (див. рис. 15, в) відрізняється топологічно від попередніх двох тим, що тут існує одне критичне значення енергії взаємодії адсорбату ε_1 , так, що при $\varepsilon > \varepsilon_1$ на поверхні шару будуть формуватися відокремлені структури адсорбату. При цьому збільшення ε приводить до зменшення середньої відстані між структурами; розширює інтервал (κ_1, κ_2) та приводить до зростання κ_0 .

4.3. Стабілізація системи за рахунок флюктуацій потоку адсорбату

Далі проведемо детальний аналіз впливу флюктуацій поверхневого потоку адсорбату на умови реалізації стаціонарних поверхневих структур, поклавши $\Sigma \neq 0$. Аналізуючи показник стійкості $\lambda(\kappa)$ при варіюванні основних керуючих параметрів системи та інтенсивності флюктуацій потоку адсорбату, було одержано діаграми стійкості, які наведено на рис. 16. З одержаних результатів випливає, що збільшення інтенсивності флюктуацій потоку адсорбату приводить до переходу системи з області формування стаціонарних відокремлених просторових структур «структурування» до області однорідного розподілу адсорбату на шарі «гладка поверхня» при критичному значенні інтенсивності флюктуацій Σ_c (рис. 16, а). При фіксованих значеннях інтенсивності шуму потоку адсорбату Σ збільшення сили анізотропії u або коефіцієнта адсорбції α приводить до реверсивного процесу упорядкування поверхні, що супроводжується формуванням стаціонарних просторових структур (див. рис. 16, а, б відповідно).

Типові залежності показника стійкості $\lambda(\kappa)$ при різних значеннях інтенсивності флюктуацій потоку адсорбату наведено на рис. 17. З рисунка випливає, що з ростом інтенсивності флюктуацій потоку адсорбату (зліва направо) вся залежність $\lambda(\kappa)$ зміщується в бік негативних значень, означаючи перехід від структурування до однорідного стану. Залежності перенормованих хвильових чисел κ_1 , κ_0 та κ_2 від інтенсивності шуму Σ при інших фіксованих параметрах системи подано на рис. 18. Спадаюча залежність періоду просторових

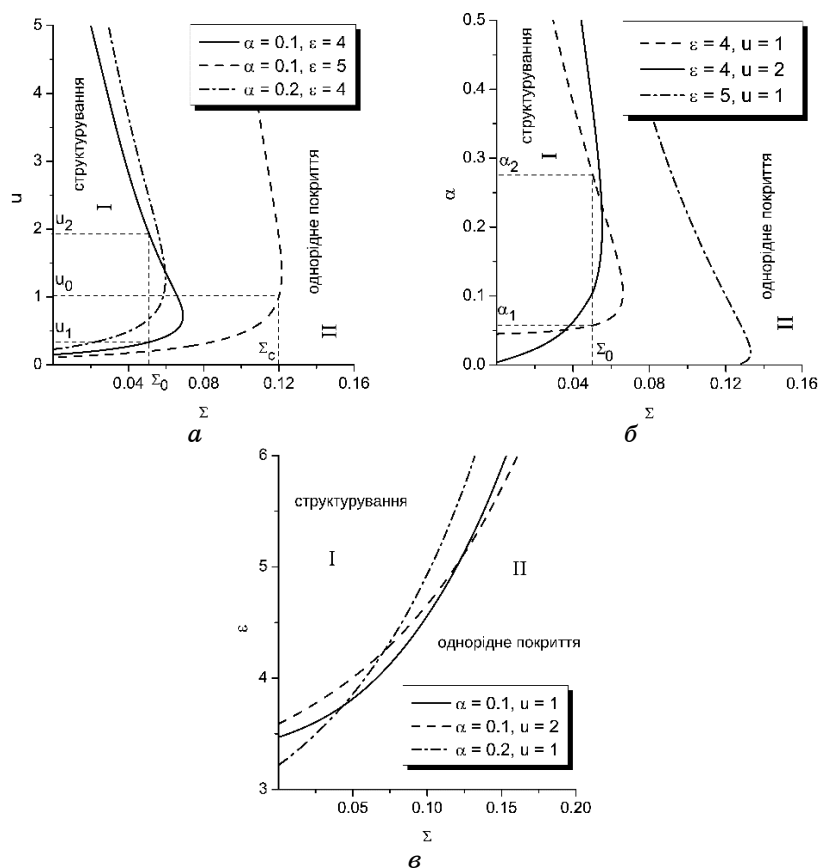


Рис. 16. Діаграми стійкості: в області I формуються відокремлені поверхневі структури; в області II адсорбат однорідно покриває шар.¹⁶

збурень κ_0 означає збільшення середньої відстані між відокремленими поверхневими структурами. Принциповим є той факт, що при $\Sigma = \Sigma_c$ маємо $\kappa \neq 0$. Це означає, що у границі $\Sigma \rightarrow \Sigma_c - 0$ поверхня шару характеризується скінченною кількістю поверхневих структур з фіксованою середньою відстанню між ними.

4.4. Структурування поверхні індуковане флюктуаціями напруженості поля

Проведемо аналіз впливу флюктуацій напруженості підведеного до підкладинки зовнішнього електричного поля, що характеризуються інтенсивністю σ^2 на можливість реалізації стійких поверхневих структур, поклавши $\Sigma = 0$.

Розраховану діаграму стійкості в координатах (σ^2, u) при різних

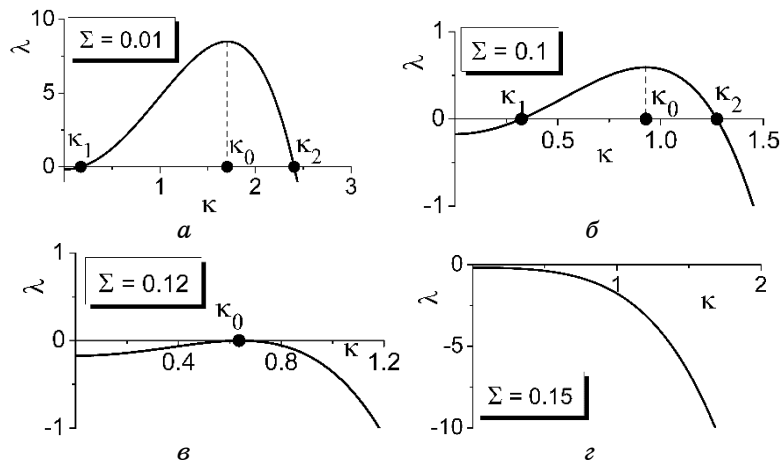


Рис. 17. Залежності показника стійкості λ від перенормованого хвильового числа κ при різних значеннях інтенсивності флюктуацій Σ при $\varepsilon = 5$, $u = 1$, $\alpha = 0,1$.¹⁷

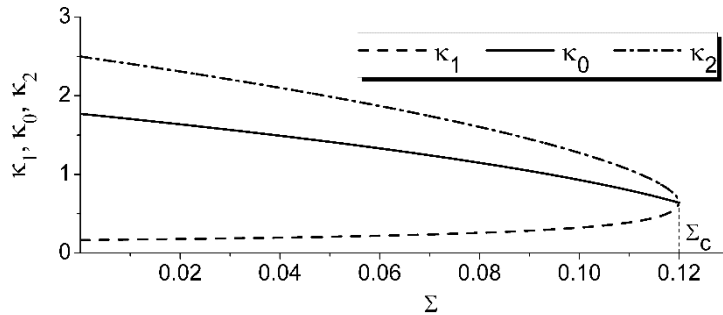


Рис. 18. Залежності хвильових чисел κ_1 , κ_0 , κ_2 від інтенсивності флюктуацій Σ при: $\varepsilon = 5$, $u = 1$, $\alpha = 0,1$.¹⁸

значеннях α і ε показано на лівій панелі на рис. 19. Тут всередині областей A_I та A_{II} показник стійкості приймає від’ємні значення при всіх $\kappa > 0$ (див. типову залежність $\lambda(\kappa)$ у правій панелі вгорі на рис. 19). В області B , обмеженої кривими однакового типу, показник стійкості $\lambda(\kappa)$ приймає позитивні значення в інтервалі (κ_1, κ_2) . Типова залежність показника стійкості λ від хвильового числа κ всередині області B показана в правій панелі внизу на рис. 19.

Розглянемо спочатку вплив конкуренції регулярної та стохастичної частин зовнішнього потоку u та σ^2 на стійкість стаціонарного однорідного стану x_{st} до неоднорідним збурень при $\alpha = 0,2$ та $\varepsilon = 3,5$, що представлено суцільними кривими на лівій панелі на рис. 19. З цього випливає, що в разі сильної анізотропії ($u = u^h$) у квазидетер-

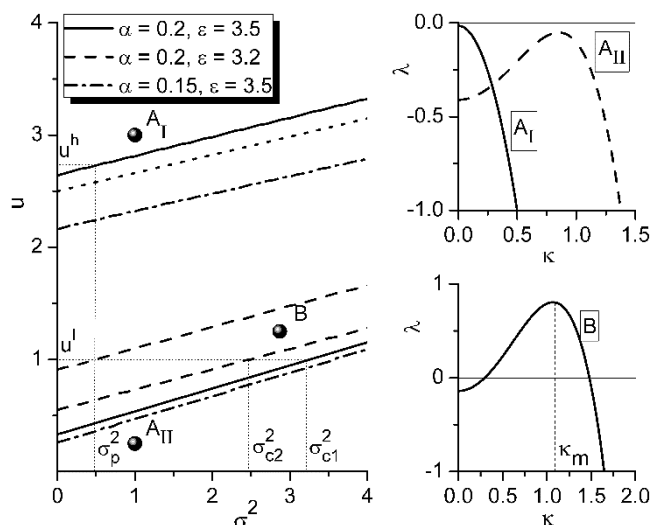


Рис. 19. Діяграма стійкості (ліва панель) та показники стійкості $\lambda(k)$ (права панель) у різних областях діяграми стійкості.¹⁹

мінованій системі ($\sigma^2 \rightarrow 0$) швидкий рух адатомів знизу вгору приводить до зниження концентрації адсорбату на шарі і необхідне пересичення концентрації адсорбату, необхідне для формування структур, не досягається. Збільшення інтенсивності шуму індукує формування структур в системі при $\sigma^2 = \sigma_p^2$ (перехід з області A_I в область B). При подальшому зростанні σ^2 зростаюча поверхня залишається структурованою. При проміжних значеннях сили анізотропії $u = u^l$ навіть у детермінованій системі поверхневі структури будуть стійкими. Тут збільшення інтенсивності шуму σ^2 забезпечує стабілізацію однорідного стану x_{st} при $\sigma^2 = \sigma_{c1}^2$.

Зменшення сили взаємодії ε при фіксованому коефіцієнті адсорбції α приводить до звуження області B , де можливе утворення стійких структур (див. штрихові криві на лівій панелі на рис. 19). Тут при фіксованих значеннях детермінованої частини зовнішнього потоку $u = u^l$ реалізується індуковані шумом реверсивні процеси структурування поверхні: у випадках, $0 \leq \sigma^2 < \sigma_p^2$ та $\sigma^2 > \sigma_{c2}^2$ адсорбат однорідно розподілятиметься по шару і формування структур є неможливим; при $\sigma^2 \in (\sigma_p^2, \sigma_{c2}^2)$ у процесі конденсації будуть реалізовуватися відокремлені поверхневі структури. Зменшення коефіцієнта адсорбції приводить до зменшення критичних значень сили анізотропії u , коли можливе формування стійких структур (пор. суцільні та штрих-пунктирні криві на лівій панелі на рис. 19). Пунктирна крива на лівій панелі на рис. 19 відповідає співвідношенню $u = 2,5 + 0,16188\sigma^2$ при $\alpha = 0,2$, $\varepsilon = 3,5$ і буде обговорюватися у наступному розділі при числовому моделюванні.

Залежність максимального значення показника стійкості, що відповідає найбільш нестійкій моді κ_m (див. праву нижню панель на рис. 19) від сили анізотропії u та інтенсивності шуму σ^2 при фіксованих $\alpha = 0,2$ та $\varepsilon = 3,5$ (суцільні криві на рис. 19) показано на рис. 20. Звідси випливає, що при збільшенні детермінованої або стохастичної частини зовнішнього потоку значення показника стійкості $\lambda(\kappa_m)$ характеризується наявністю максимального значення. Це означає, що просторовий порядок системи збільшується, досягає максимального значення і потім зменшується з ростом як u , так і σ^2 . Значення σ_m^2 , яке відповідає максимально упорядкованій поверхні, збільшується з ростом u , що показано на вставці на рис. 20. Крім того, зі збільшенням сили анізотропії u , враховуючи $\sigma^2 = \sigma_m^2(u)$ з вставки на рис. 20, максимальне значення показника стійкості $\lambda(\kappa_m)$ збільшується. Отже, збільшення як стохастичної, так і детермінованої частин зовнішнього потоку сприяє формуванню добре впорядкованої поверхні при осадженні в системі «плазма–конденсат». Така немонотонна залежність максимального значення показника стійкості від детермінованої та стохастичної частин зовнішнього потоку означає зміну типу поверхневих структур, що реалізуються при осадженні. Таким чином, можна очікувати, що уведені флуктуації приведуть до морфологічного перетворення структури поверхні зі збільшенням інтенсивності шуму σ^2 .

Слід підкреслити, що проведений аналіз стійкості однорідного стаціонарного стану до неоднорідних збурень дозволяє визначити умови (значення керувальних параметрів), коли просторова нестійкість приведе до утворення стаціонарних багатопарових поверхне-

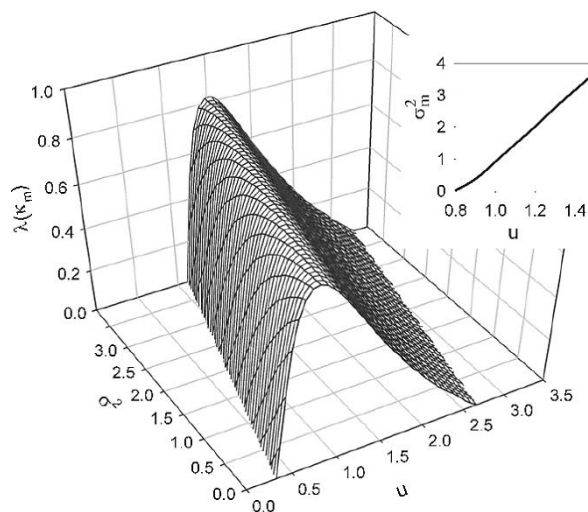


Рис. 20. Залежність показника стійкості λ , розрахованого для найбільш нестійкої моди κ_m при $\alpha = 0,2$ та $\varepsilon = 3,2$.²⁰

вих структур в досліджуваній системі «плазма–конденсат». У той же час, цей аналіз не дає жодної інформації про морфологію поверхні, тип поверхневих структур, а саме, відокремлені структури адсорбату на шарі, або відокремлені отвори в матриці адсорбату, або видовжені перколяційні острови.

Проведений аналіз системи на стійкість дозволяє прогнозувати можливість формування просторових структур у стаціонарному режимі. Для проведення детального аналізу впливу флюктуацій потоку адсорбату на динаміку структуроутворення та можливість контролювання морфологією поверхні, типом та розміром поверхневих структур у досліджуваній стохастичній системі «плазма–конденсат» у наступному розділі нами буде проведено числові симуляції.

5. ЧИСЛОВЕ МОДЕЛЮВАННЯ ПРОЦЕСІВ ФОРМУВАННЯ ТА РОСТУ ПОВЕРХНЕВИХ СТРУКТУР

Далі будемо проводити числові симуляції розв'язуючи рівняння Лянжевена (12) на двовимірній трикутній ґратниці з лінійним розміром $L = 256\Delta x$ та періодичними межовими умовами. Просторові похідні другого та четвертого порядків розраховувались відповідно до стандартної скінченно-ріжницевої 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 $\langle x(r, 0) \rangle = \langle (\delta x(r, 0))^2 \rangle = 10^{-2}$. У розрахунковій схемі загальний розмір системи складав $L \approx 40L_D$.

5.1. Контролювання морфологією поверхні в границі слабких флюктуацій

У даному розділі встановимо режими контролю динамікою росту поверхні, її морфологією, типом та розміром поверхневих структур при конденсації у границі слабких флюктуацій, поклавши $\Sigma = \sigma^2 = 0$, варіюючи коефіцієнт адсорбції (тиск всередині камери), силу анізотропії в переходах адатомів між сусідніми шарами (напруженість підведеного до підкладинки електричного поля) та енергію взаємодії адсорбату.

На рисунку 21, *a*, *б* наведено знімки еволюції системи при різних значеннях сили анізотропії у переходах адатомів між шарами *u*. Тут у відтінках сірого кольору наведено розподіл адсорбату на шарі від чорного (мінімальне значення) до білого (максимальне значення) для кожного моменту часу.

На рисунку 22, *a*, *б* представлено еволюцію середньої концентрації адсорбату на шарі $\langle x \rangle$ і дисперсії поля концентрації $\langle (\delta x)^2 \rangle = \langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2$ при різних значеннях керувальних параметрів

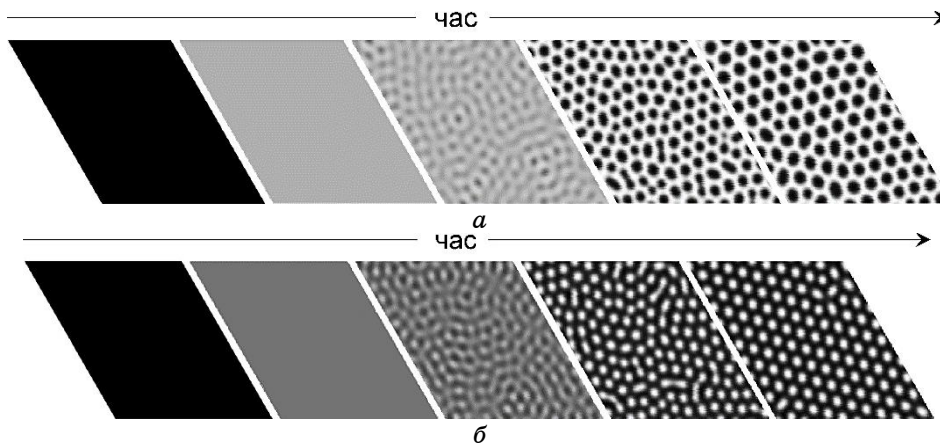


Рис. 21. Знімки еволюції системи при $\alpha = 0,15$, $\varepsilon = 3,2$ та: а) $u = 0,4$; б) $u = 0,6$.²¹

системи. Величина $\langle(\delta x)^2\rangle$ відіграє роль параметра порядку у проблемах формування структур [30, 36, 37]. У випадку $\langle(\delta x)^2\rangle = 0$ суттєвої різниці в концентрації адсорбату x в різних комірках обчислювальної ґратки не існує, а отже адсорбат рівномірно заповнює даний шар. Зростання величини $\langle(\delta x)^2\rangle$ з часом вказує на проходження процесів упорядкування на поверхні з утворенням щільної (збагаченої на адсорбат) та розбавлені (збіднені на адсорбат) фаз. При цьому, чим більше значення параметра порядку $\langle(\delta x)^2\rangle$, тим більш структурованою є поверхня: формування більш чіткої межі поділу вказаних фаз, а отже, просторовий порядок просторової конфігурації адсорбату в системі є більшим. У випадку, коли параметр порядку $\langle(\delta x)^2\rangle$ досягає стаціонарного ненульового значення, просторова конфігурація стає стабільною (процеси перерозподілу адсорбату завершуються) і сформована структурована поверхня є стійкою.

З одержаних результатів випливає, що під час еволюції системи середня концентрація адсорбату на шарі зростає з часом (див. рис. 22, а). При цьому параметр порядку $\langle(\delta x)^2\rangle = 0$ (див. рис. 22, б) 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 (див. рис. 22, б), означаючи початок процесів самоорганізації адсорбату з формуванням просторових структур адсорбату (рис. 21, а) або отворів в матриці адсорбату (рис. 21, б), в залежності від коефіцієнта адсорбції α , енергії взаємодії адсорбату ε та сили анізотропії u . На пізніх стадіях величини $\langle x \rangle$ та $\langle(\delta x)^2\rangle$ набувають квазістаціонарних значень і на поверхні шару формуються стійкі просторові структури. З рисунків 22, а, б випливає, що збільшення сили анізотропії u прискорює процеси структуроутворення та приводить до зменшення як стаціонарної

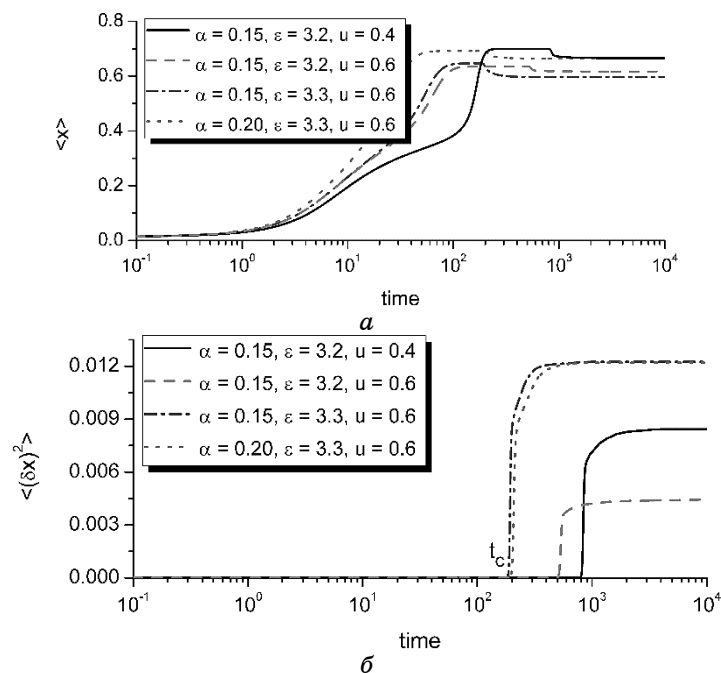


Рис. 22. Еволюція а) середньої концентрації адсорбату та б) дисперсії поля концентрації при різних значеннях параметрів системи.²²

концентрації адсорбату, $\langle x \rangle_{st}$, так і параметра порядку $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$ (пор. суцільну та штрихову криві). Збільшення енергії взаємодії ε 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. 22, а, б). Збільшення коефіцієнта адсорбції α приводить до затримки у процесах упорядкування поверхні та збільшення концентрації адсорбату (пор. штрих-пунктирну та пунктирну криві на рис. 22, а, б).

За результатами аналізу досліджуваної системи «плазма-конденсат» на стійкість 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 $u \in (u_1, u_2)$. Шляхом варіювання керувальних параметрів ми будемо аналізувати значення моменту часу t_c , коли починають реалізуватися процеси формування структур (коли починає зростати параметер порядку $\langle (\delta x)^2 \rangle$). Відповідні залежності показано на рис. 23. З одержаних результатів випливає, що при фіксованому значенні енергії взаємодії адсорбату ε і напруженості електричного поля u збільшення коефіцієнта адсорбції від α_1 приводить до знижен-

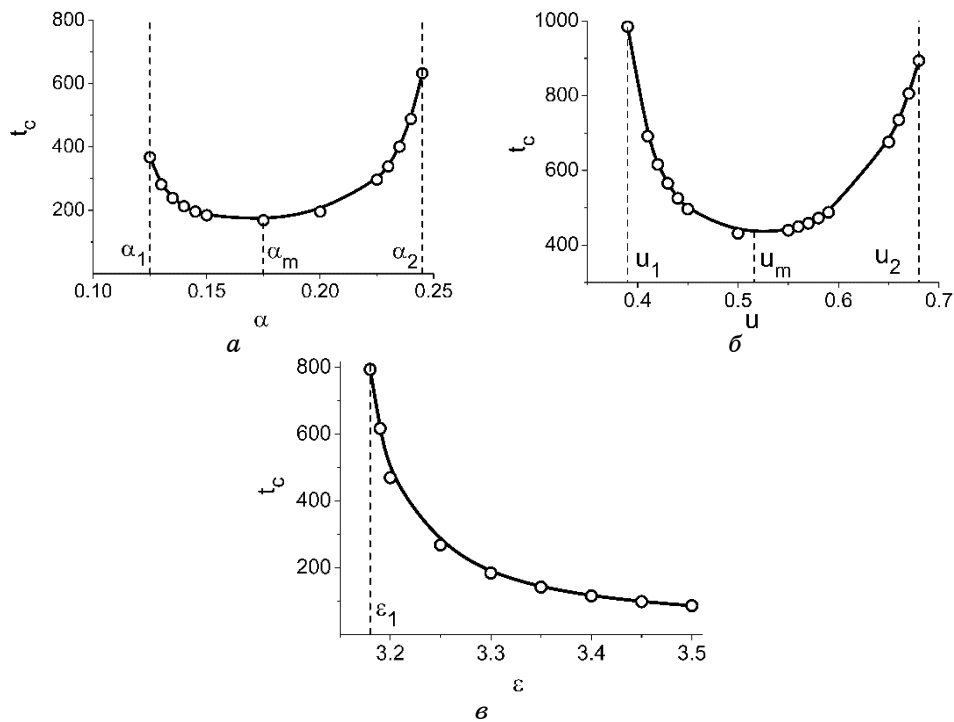


Рис. 23. Залежності моменту часу t_c , коли починають реалізуватися процеси формування структур, при: а) $\epsilon = 3,3$, $u = 0,6$; б) $\epsilon = 3,2$, $\alpha = 0,15$; в) $\alpha = 0,15$, $u = 0,6$.²³

ня t_c , що означає прискорення процесів упорядкування (див. рис. 23, а). Момент часу t_c оптимізується з коефіцієнтом адсорбції α , досягаючи мінімального значення при $\alpha = \alpha_m$. Подальше збільшення коефіцієнта адсорбції призводить до затримки в динаміці упорядкування, оскільки t_c зростає з α . Аналогічна ситуація спостерігається також зі зміною сили анізотропії u при інших фіксованих параметрах: в інтервалі (u_1, u_2) значення моменту часу початку упорядкування в системі t_c досягає мінімального значення при $u = u_m$ (рис. 23, б). Збільшення сили взаємодії адсорбату ϵ приводить до прискорення процесів упорядкування (t_c спадає з ϵ), за умови, коли ϵ перевищує критичне значення ϵ_1 (див. рис. 23, в).

Слід зазначити, що критичні значення $\alpha_{1,2}$, $u_{1,2}$ та ϵ_1 , одержані в рамках процедури числового моделювання добре узгоджуються з відповідними значеннями, одержаними в рамках аналізу системи на стійкість (див. рис. 14 та рис. 23).

Далі розглянемо залежності стаціонарних значень середньої концентрації адсорбату $\langle x \rangle_{st}$ та параметра порядку $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$ від керуваль-

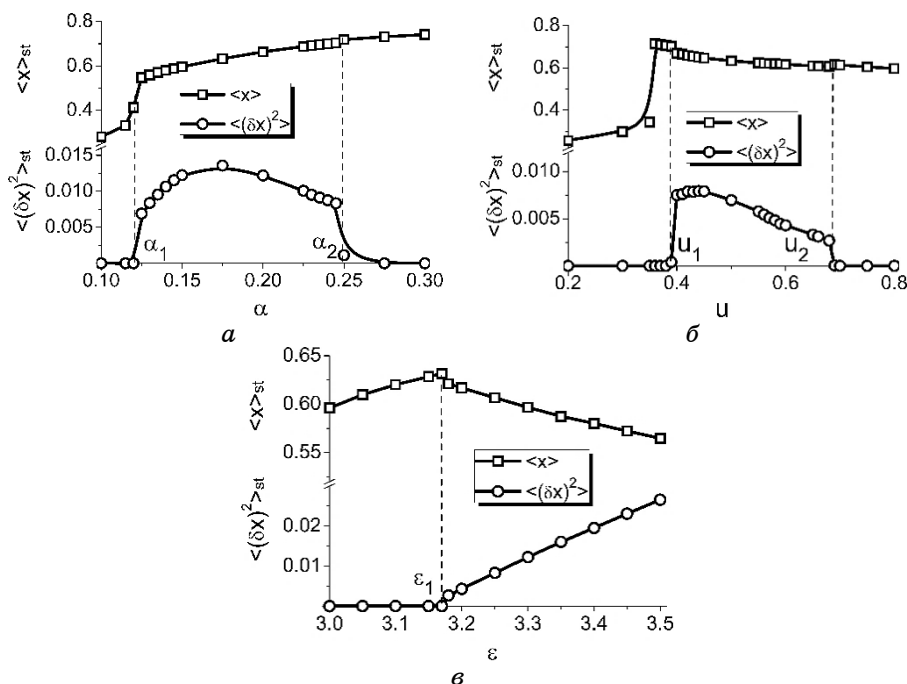


Рис. 24. Залежності стаціонарних значень середньої концентрації адсорбату $\langle x \rangle_{st}$ та параметра порядку $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$ при: а) $\varepsilon = 3,3$, $u = 0,6$; б) $\varepsilon = 3,2$, $\alpha = 0,15$; в) $\alpha = 0,15$, $u = 0,6$.²⁴

них параметрів системи, що наведені на рис. 24. З рисунка видно, що зі збільшенням коефіцієнта адсорбції значення стаціонарної концентрації адсорбату зростає, тоді як в інтервалі $\alpha \in (\alpha_1, \alpha_2)$ стаціонарний параметер порядку приймає ненульове значення: він збільшується з нуля до максимального значення, а потім спадає до нуля (див. рис. 24, а). Зі зміною напруженості електричного поля при $u < u_1$ величина $\langle x \rangle_{st}$ зростає, але $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st} = 0$. В інтервалі (u_1, u_2) параметер порядку оптимізується (див. рис. 24, б). Збільшення енергії взаємодії адсорбату $\varepsilon < \varepsilon_1$ приводить до зростання стаціонарного зростання концентрації адсорбату з $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st} = 0$ (див. рис. 24, в); при $\varepsilon > \varepsilon_1$ концентрація адсорбату $\langle x \rangle_{st}$ зменшується з ростом ε і поверхня стає більш впорядкованою за рахунок зростання $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$ з ε .

Таким чином, з одержаних результатів в рамках аналізу системи на стійкість та числового моделювання можна зробити висновок, що збільшення або коефіцієнта адсорбції або напруженості електричного поля поблизу підкладинки приводить до реверсивного процесу

впорядкування поверхні, що супроводжується процесами формування стаціонарних просторових структур, в багат шаровій системі «плазма–конденсат».

Далі, проаналізуємо вплив основних керувальних параметрів системи на зміну морфології поверхні, тип, кількість і лінійний розмір структур адсорбату/отворів, які реалізуються при осадженні в квазістаціонарному режимі (при великому часі). На рисунку 25, *а, б, в* наведено зміну морфології поверхні при зміні коефіцієнта адсорбції α , сили анізотропії u та енергії взаємодії адсорбату ϵ , відповідно. Спочатку розглянемо вплив коефіцієнта адсорбції на морфологію шару (див. рис. 25, *а*). З нього випливає, що у випадку $\alpha > \alpha_1$ 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 $\alpha \approx \alpha_m$ (див. рис. 23, *а*) одержуємо лабіринтоподібну 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 α дозволяє зменшити лінійні розміри цих отворів і при $\alpha > \alpha_2$ адсорбат з високою концентрацією однорідно покриває шар. Абсолютно протилежна ситуація відбувається із збільшенням напруженості підведеного до підкладки електричного поля u (див. рис. 25, *б*). Тут зростання $u > u_1$ забезпечує перетворення морфології шару з відокремленими отворами всередині матриці адсорбату (зні-

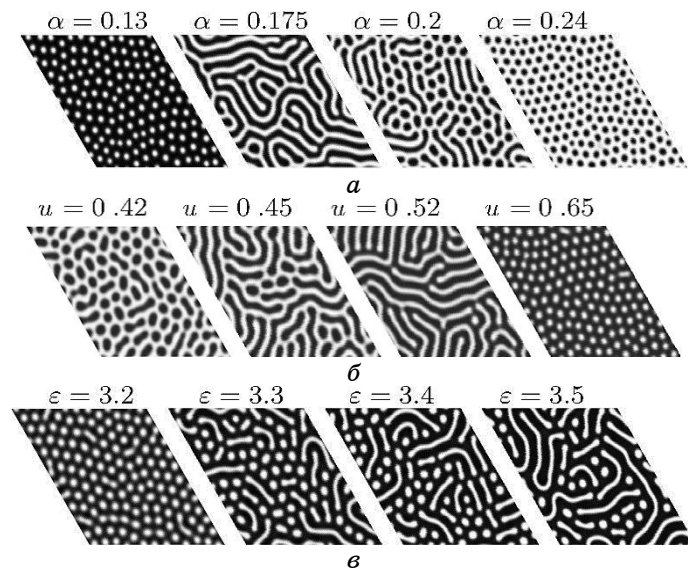


Рис. 25. Типові ілюстрації морфології поверхні у квазістаціонарному режимі, одержані при: *а*) $\epsilon = 3,3, u = 0,6$; *б*) $\epsilon = 3,2, \alpha = 0,15$; *в*) $\alpha = 0,15, u = 0,6$.²⁵

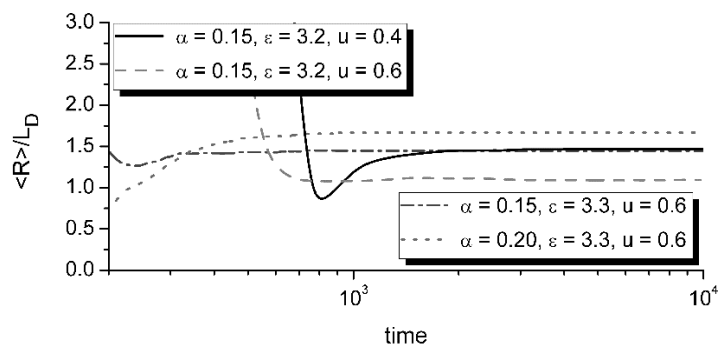


Рис. 26. Еволюція середнього розміру структур адсорбату/отворів $\langle R \rangle$, усередненого за усіма структурами, при різних значеннях керувальних параметрів.²⁶

мок для $u = 0,42$) через лабіринтоподібну структуру при $u \approx u_m$ (див. рис. 23, б та знімок для $u = 0,52$) до відокремлених структур адсорбату (знімок для $u = 0,65$). Збільшення енергії взаємодії адсорбату ε забезпечує сильну взаємодію сферичних островів адсорбату і, як наслідок, формування витягнутих структур (див. зміни в морфології шару із зростанням ε на рис. 25, в).

З метою встановлення впливу основних керуючих 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 рисунку 26 показано еволюцію середнього розміру структур адсорбату/отворів $\langle R \rangle$, усередненого за усіма структурами, при різних значеннях керуючих 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, одержаних при різних значеннях напруженості електричного поля u , маємо, що лінійний розмір островів адсорбату є меншим за лінійний розмір отворів в матриці адсорбату. Збільшення енергії взаємодії адсорбату ε (пор. штрихову та пунктирну криві) приводить до збільшення стаціонарного значення середнього лінійного розміру островів адсорбату внаслідок формування видовжених поверхневих структур. З ростом коефіцієнта адсорбції α внаслідок структурного перетворення в морфології поверхні, отвори характеризуються більшими розмірами, порівняно зі структурами адсорбату.

На рисунку 27 наведено залежності кількості $N_{a,v}$ відокремлених структур, що реалізуються на поверхні шару, та їхнього середнього розміру $\langle R_{a,v} \rangle$ від коефіцієнта адсорбції α (рис. 27, а), напруженості електричного поля u (рис. 27, б) та енергії взаємодії ε (рис. 27, в). Спо-

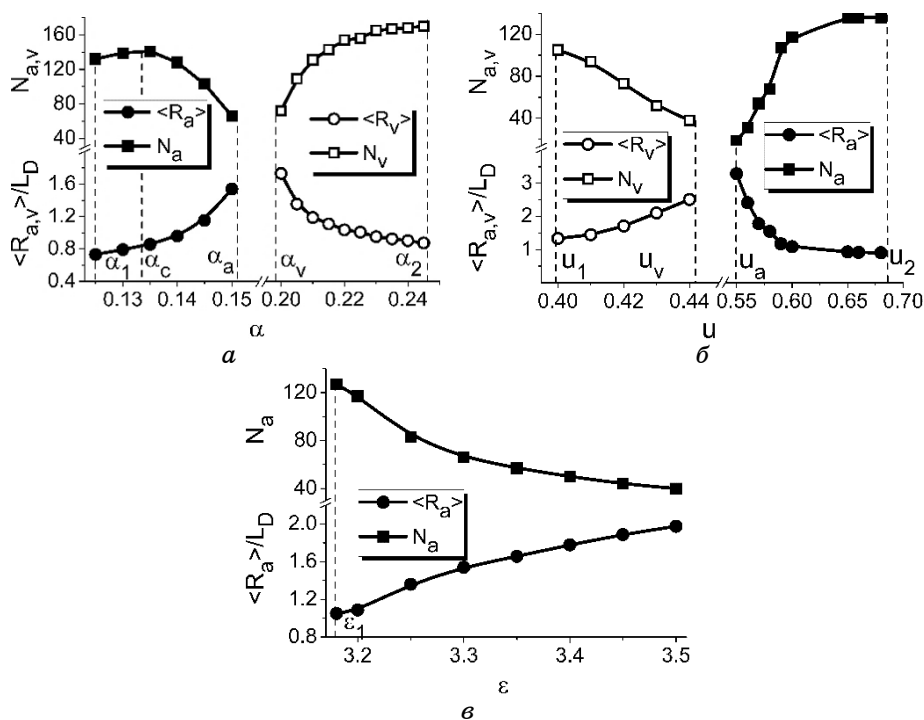


Рис. 27. Залежність середнього лінійного розміру структур адсорбату (заповнені кружки) $\langle R_a \rangle$ й отворів (порожні кружки) $\langle R_v \rangle$ та кількість структур адсорбату (заповнені квадрати) N_a й отворів (порожні квадрати) N_v при: а) $\varepsilon = 3,3, u = 0,6$; б) $\varepsilon = 3,2, \alpha = 0,15$; в) $\alpha = 0,15, u = 0,6$.²⁷

чатку 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 α 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 α . В інтервалі $\alpha \in [\alpha_a, \alpha_v]$ маємо лабіринтоподібні структури (див. знімок для $\alpha = 0,175$ на рис. 25, а). Відокремлені сферичні та подовжені отвори в матриці адсорбату починають організовуватися при $\alpha > \alpha_v$ (див. знімок для $\alpha = 0,2$ на рис. 25, а) і подальше збільшення $\alpha < \alpha_2$ забезпечує формування відокремлених сферичних отворів. Їх кількість N_v зростає, а лінійний розмір $\langle R_v \rangle$ зменшується з ростом α . Зі збільшенням напруженості електричного поля біля підкладинки реалізується протилежна ситуація.

Починаючи з $u = u_1$, кількість відокремлених отворів в матриці адсорбату зменшується зі збільшенням їх лінійного розміру (див. рис. 27, б та знімки для $u = 0,42$ та $u = 0,45$ на рис. 25, б). В інтервалі

$u \in (u_v, u_a)$ реалізуються лабіринтні структури. При $u > u_a$ збільшення напруженості електричного поля $u < u_2$ забезпечує зростання кількості відокремлених структур адсорбату невеликого розміру. При збільшенні енергії взаємодії адсорбату ε , починаючи з ε_1 , відокремлені структури адсорбату стають видовженими (збільшення лінійного розміру) та їх кількість зменшується (див. рис. 27, в).

5.2. Керування морфологією поверхні за рахунок флюктуацій потоку адсорбату

З метою встановлення впливу флюктуацій поверхневого потоку ад-

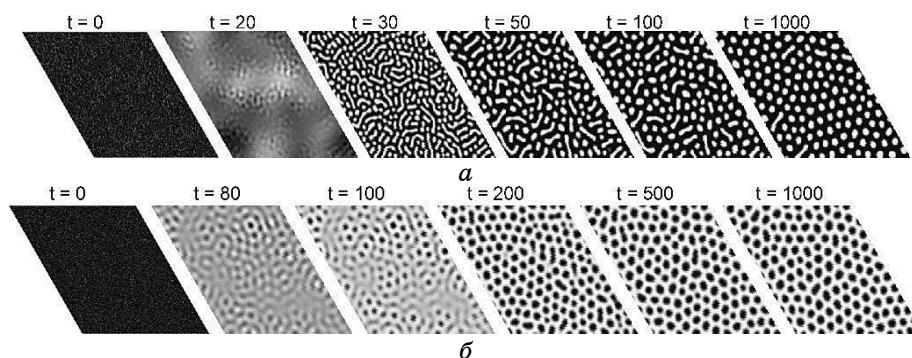


Рис. 28. Знімки еволюції системи при (а) $\Sigma = 0,05$ та (б) $\Sigma = 0,115$.²⁸

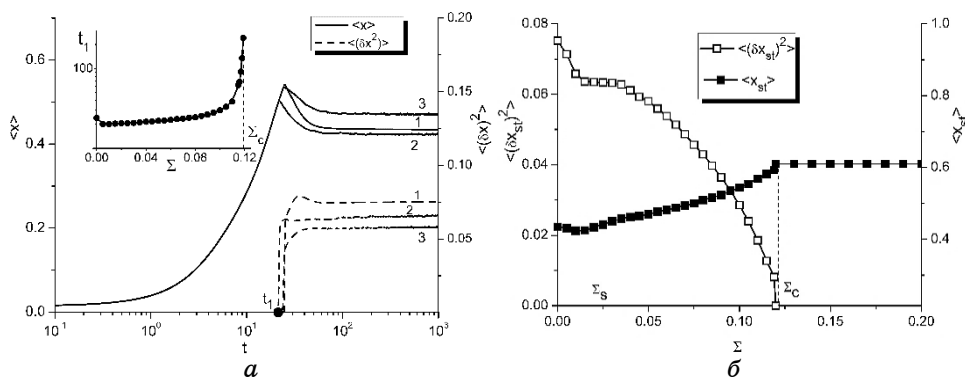


Рис. 29. (а) Еволюція середньої концентрації адсорбату $\langle x \rangle$ та параметра порядку $\langle(\delta x)^2\rangle$ при: 1) $\Sigma = 0$, 2) $\Sigma = 0,01$, 3) $\Sigma = 0,1$. На вставці наведено залежність моменту часу t_1 , коли починаються процеси структуривання, від інтенсивності флюктуацій Σ . (б) Залежності середніх стаціонарних значень концентрації адсорбату $\langle x_{st} \rangle$ та параметра порядку $\langle(\delta x_{st})^2\rangle$ від інтенсивності шуму Σ .²⁹

сорбату на динаміку структурування поверхні та її морфологію дали зафіксуємо основні параметри системи, а саме, $u = 1,0$, $\varepsilon = 5,0$, $\alpha = 0,1$, $\sigma^2 = 0$ та будемо проводити симуляції за схемою, описаною у попередньому розділі. При розв'язанні рівняння Лянжевена з мультиплікативним шумом, що інтерпретується у сенсі Стратоновича, будемо використовувати алгоритм Мільштейна [75]. Джерело білого шуму будемо генерувати з використанням методу Бокса–Мюллера, що дозволяє генерувати випадкові числа з Гаусовим розподілом [76]. На рисунку 28, а наведено ілюстрації еволюції системи при $\Sigma = 0,05$. При фіксованих значеннях параметрів системи та малих інтенсивностях флюктуацій впродовж часу конденсації формуються відокремлені структури адсорбату. При підвищених значеннях інтенсивності флюктуацій потоку адсорбату $\Sigma = 0,115$ на даному шарі з часом формуються відокремлені отвори в матриці адсорбату (див. рис. 28, б). Таким чином, зі збільшенням інтенсивності флюктуацій 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 флюктуацій інтенсивності Σ далі розглянемо еволюцію середньої концентрації $\langle x \rangle$ та дисперсії $\langle (\delta x)^2 \rangle$, наведену на рис. 29, а при різних значеннях інтенсивності шуму Σ .

З одержаних результатів випливає, що на початкових стадіях еволюції системи флюктуації 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. 28, а та при $t = 80$ на рис. 28, б). 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 флюктуацій Σ . 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, яке визначається параметрами системи. Дисперсія $\langle (\delta x)^2 \rangle$ 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 $\langle (\delta x)^2 \rangle$, залежного від інтенсивності флюктуацій Σ , означаючи формування стаціонарних просторових структур. Момент часу t_1 , коли починаються процеси упорядкування, залежить від інтенсивності шуму Σ , що представлено на вставці до рис. 29, а. Видно, що врахування флюктуацій 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 флюктуацій приводить до уповільнення динаміки формування структур (зростання $t_1(\Sigma)$); $\langle x_{st} \rangle$ зростає (суцільна крива 3). Стационарне значення параметра порядку $\langle (\delta x)^2 \rangle$ зменшується з ростом Σ (див. штрихові криві на рис. 29, а).

На рисунку 29, б наведено залежності стаціонарних значень середньої концентрації адсорбату $\langle x_{st} \rangle$ та параметра порядку $\langle (\delta x)^2 \rangle$ від інтенсивності флюктуацій Σ . Видно, що з ростом Σ величина $\langle x_{st} \rangle$ спадає, досягає мінімального значення при $\Sigma = \Sigma_s$ та потім зростає

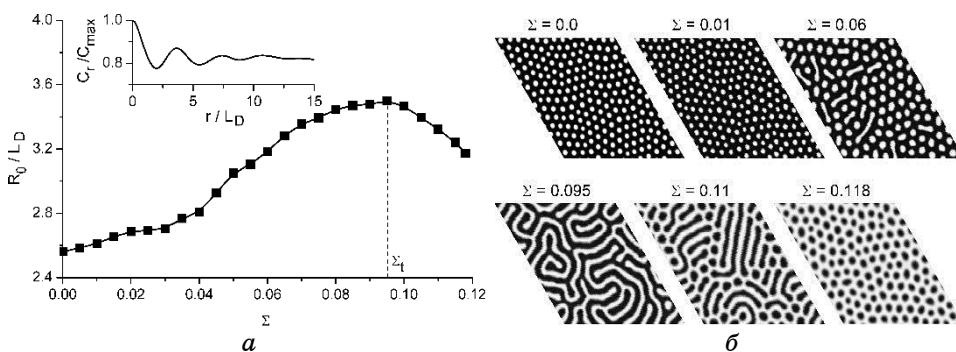


Рис. 30. (а) Залежність середньої відстані між відокремленими структурами $\langle R_0 \rangle$ від інтенсивності флюктуацій потоку адсорбату Σ . (б) Знімки поверхні шару у квазістаціонарному режимі при різних значеннях інтенсивності шуму Σ .³⁰

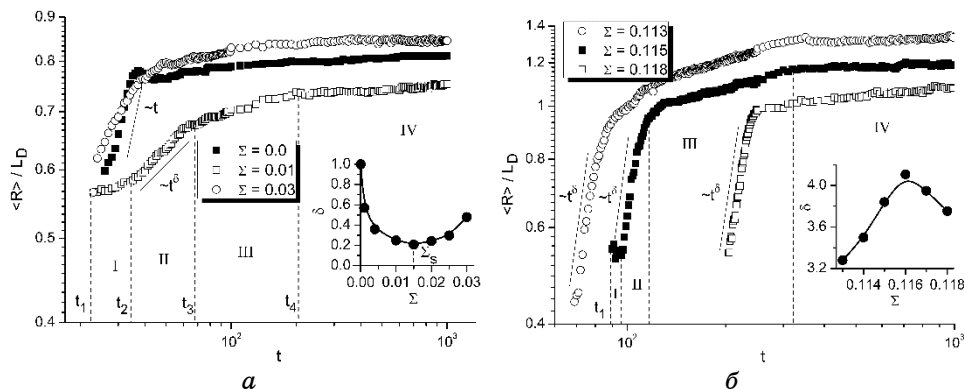


Рис. 31. Еволюція середнього лінійного розміру $\langle R \rangle$ структур адсорбату (а) та отворів (б) при різних значеннях інтенсивності шуму. Вставки на рисунках ілюструють залежності показника росту δ від Σ .³¹

доки $\Sigma < \Sigma_c$ (див. заповнені квадрати на рис. 29, б). Величина $\langle (\delta x)^2 \rangle$ спадає з Σ та набуває нульових значень при $\Sigma \geq \Sigma_c$ (пусті квадрати на рис. 29, б). 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. 29, б при $\Sigma > \Sigma_c$). Необхідно відзначити, що критичне значення $\Sigma_c \approx 0,12$, одержане в рамках аналізу на стійкість (див. рис. 16, а та рис. 17) добре узгоджується зі значенням, одержаним в рамках процедури числового моделювання при фіксованих значеннях інших параметрів системи.

Дослідження зміни морфології поверхні може бути проведено з використанням статистичного аналізу, розглядаючи стаціонарну двоточкову кореляційну функцію $C(r) = \langle x(r)x(0) \rangle$. Вона може бути представлена у вигляді:

$$C(r) = A \exp(-r/R_c) \cos(2\pi r/R_0 + \phi), \quad (20)$$

де R_c та R_0 визначають кореляційний радіус та середню відстань між структурами (період просторових модуляцій) відповідно. Ці величини можуть бути використані для встановлення критичних значень параметрів системи, коли відбувається морфологічний перехід [47, 77]. Залежність R_0 в одиницях дифузійної довжини L_D від інтенсивності шуму Σ наведено на рис. 30, а з типовою залежністю кореляційної функції $C(r)$ на вставці. Видно, що величина R_0 зростає при $\Sigma \in (0, \Sigma_t)$ і на поверхні формуються відокремлені структури адсорбату. Збільшення Σ приводить до формування видовжених структур адсорбату разом зі сферичними структурами (див. знімки при $\Sigma = 0, 0,01$ та $0,06$ на рис. 30, б). В околі Σ_t середня відстань між структурами R_0 набуває максимального значення і на поверхні реалізується лабіринтна структура перколювальних кластерів адсорбату (див. знімок при $\Sigma = 0,095$ на рис. 30, б). 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. 30, б).

З метою проведення аналізу впливу інтенсивності флюктуацій на лінійний розмір структур будемо використовувати метод перколювального кластера 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 флюктуацій Σ представлено на рис. 31, а, б відповідно у логаритмічному масштабі. Величина $\langle R \rangle$ може бути асоційована із середнім

$(1 / 2N) \sum_i^M L_i$, розрахованим на n -му шарі, сума береться за всіма M структурами (див. рис. 1).

Спочатку розглянемо випадок малих значень інтенсивності флюктуацій, коли реалізуються відокремлені структури адсорбату, що наведено на рис. 31, *a*. 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^δ . При $t = t_3$ її змінює стадія огрубіння (стадія III), коли змінюється як форма, так і розмір структур адсорбату внаслідок їх взаємодії між собою. На пізніх ча-

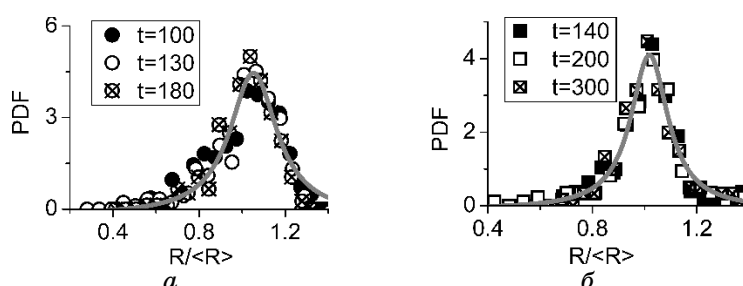


Рис. 32. Розподіли структур адсорбату й отворів за розмірами $R/\langle R \rangle$ на стадії росту в різні моменти часу при (а) $\Sigma = 0,01$ та (б) $\Sigma = 0,115$, відповідно.³²

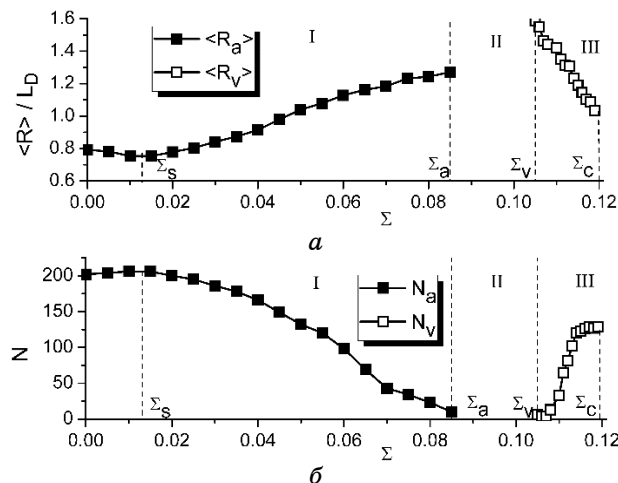


Рис. 33. Залежності (а) середнього лінійного розміру структур адсорбату/отворів та (б) кількості структур від інтенсивності шуму Σ .³³

сах, при $t > t_4$, настає квазістаціонарний режим, коли середній розмір структур адсорбату суттєво не змінюється з часом (стадія IV). На вставці до рис. 31, а наведено залежність показника росту δ від інтенсивності шуму Σ на стадії II. Видно, що в чисто детерміністичній системі (при $\Sigma = 0$) реалізується нормальний закон росту з $\delta = 1$ (див. заповнені квадрати на рис. 31, а). Урахування флюктуацій приводить до уповільнення динаміки росту середнього розміру: δ спадає з Σ , досягає мінімального значення при $\Sigma = \Sigma_s$ і потім починає зростати з Σ . На рисунку 31, б аналогічні залежності представлено при підвищених значеннях інтенсивності шуму Σ , коли формуються відокремлені структури отворів в матриці адсорбату. Тут середній розмір отворів зростає на стадії II з асимптотикою t^δ (крива з заповненими квадратами при $\Sigma = 0,115$ на рис. 31, б).

Розподіли структур адсорбату та отворів за розмірами на стадії росту в різні моменти часу наведені на рис. 32, а, б при $\Sigma = 0,01$ та $\Sigma = 0,115$ відповідно. Одержані розподіли є універсальними, (не змінюються з часом), а одержані числові дані добре апроксимуються розподілом Лоренца (суцільні криві).

Далі детально проаналізуємо вплив інтенсивності шуму Σ на кількість N поверхневих структур та їх лінійний розмір $\langle R \rangle$ у квазістаціонарному випадку. Залежності $\langle R \rangle(\Sigma)$ та $N(\Sigma)$ подано на рис. 33, а, б, відповідно. На даних залежностях можна виділити три області, позначені I, II та III при $\Sigma \in [0, \Sigma_c)$. В області I при малих значеннях інтенсивності шуму формуються відокремлені структури адсорбату (див. знімки при $\Sigma = 0$ та $0,01$ рис. 30, б). Тут при $\Sigma < \Sigma_s$ флюктуації 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. 31, а) та 4) формування видовжених структур адсорбату (пор. знімки при $\Sigma = 0,01$ та $\Sigma = 0,06$ на рис. 30, б).

В області II, коли $\Sigma_a < \Sigma < \Sigma_c$, формується лабіринтна структура, що характеризується наявністю перколювальних кластерів адсорбату (див. знімок при $\Sigma = 0,095$ на рис. 30, б). З подальшим ростом інтенсивності флюктуацій Σ в області III, реалізуються відокремлені отвори в матриці адсорбату (див. знімок при $\Sigma = 0,11$ на рис. 30, б). Тут збільшення інтенсивності шуму приводить до формування сферичних отворів та зменшення їх лінійного розміру (пор. знімки при $\Sigma = 0,11$ та при $\Sigma = 0,118$ на рис. 30, б).

Проаналізуємо розподіли поверхневих структур за розмірами у квазістаціонарному режимі при різних значеннях інтенсивності флюктуацій Σ , наведені на рис. 34. Видно, що при малому значенні інтенсивності шуму (див. рис. 34, а), коли формуються відокремлені структури адсорбату, відповідний розподіл добре узгоджується з ро-

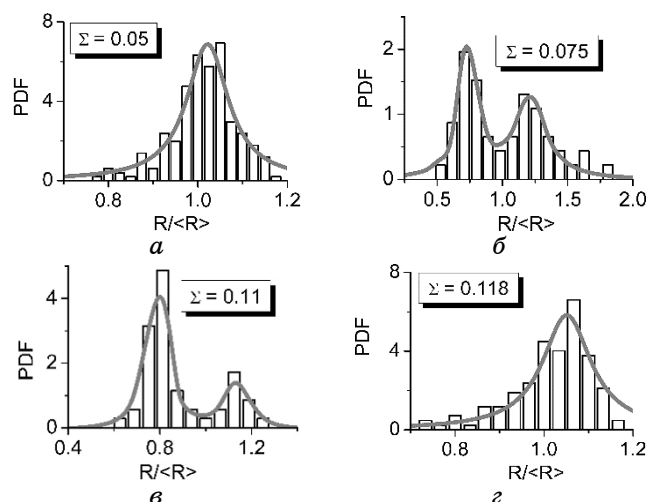


Рис. 34. Розподіли структур за розмірами $R/\langle R \rangle$ у квазістаціонарному режимі при різних значеннях інтенсивності шуму Σ .³⁴

зподілом Лоренца. При $\Sigma = 0,075$, коли реалізуються як сферичні острови адсорбату, так і видовжені структури, відповідний розподіл є бімодальним та добре апроксимується змішаним розподілом Лоренца, який представляється сумою двох Лоренціанів (див. рис. 34, б). Аналогічна ситуація реалізується і при $\Sigma = 0,11$, коли формуються сферичні та видовжені отвори в матриці адсорбату (див. рис. 34, в). При великих значеннях інтенсивності флюктуацій розподіл отворів за розмірами є унімодальним та дається розподілом Лоренца (див. рис. 34, г). Аналогічні бімодальні розподіли експериментально спостерігалися при адсорбції $\text{Rh}(\text{CO})_2(\text{acac})$ на $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}_3\text{Al}$ (111) [78] та при формуванні нанокластерів Ag на поверхні TiO_2 (110) [79].

5.3. Вплив флюктуацій напруженості поля на динаміку формування поверхневих структур

Наприкінці розділу дослідимо вплив флюктуацій напруженості підведеного до підкладинки електричного поля з інтенсивністю σ^2 на динаміку структурування зростаючої поверхні, тип та розмір поверхневих структур. Для цього покладемо $\Sigma = 0$. Еволюцію морфології поверхні при фіксованих значеннях основних параметрів системи, $\alpha = 0,2$, $\varepsilon = 3,5$, $u = 1,0$, та різних значеннях інтенсивності флюктуацій сили анізотропії вертикальної дифузії атомів між шарами σ^2 : $\sigma^2 < \sigma_m^2$ та $\sigma^2 > \sigma_m^2$ (див. рис. 20) представлено зліва направо на рис. 35, а та рис. 35, б відповідно.

З одержаних результатів випливає, що в процесі конденсації піс-

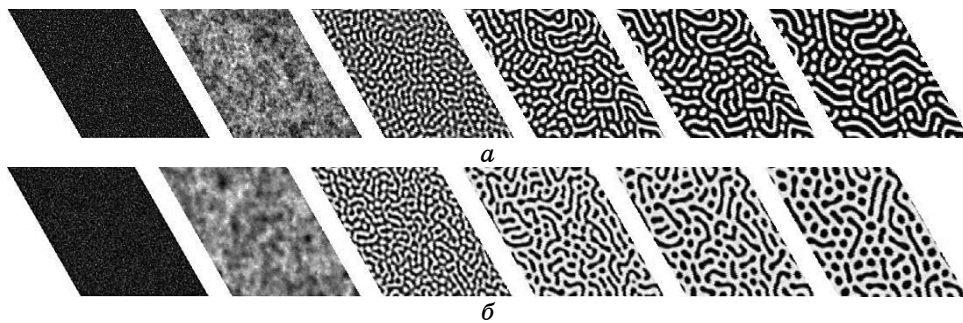


Рис. 35. Еволюція морфології поверхні (зліва направо) при $\alpha = 0,2$, $\varepsilon = 3,5$, $u = 1,0$ та: *a*) $\sigma^2 = 0,5$; *б*) $\sigma^2 = 2,5$.³⁵

ля певного інкубаційного періоду внаслідок взаємодії адсорбату реалізуються процеси самоорганізації (структурування) адсорбату: утворення великої кількості дрібних кластерів адсорбату. Ці кластери взаємодіють між собою і в залежності від умов конденсації утворюють стаціонарну картину морфології поверхні, показаної в останній колонці на рис. 35. Проаналізуємо детально динаміку структурування поверхні при різних значеннях інтенсивності флюктуацій напруженості підведеного до підкладинки зовнішнього електричного поля. При малих значеннях інтенсивності шуму (див. рис. 35, *a* при $\sigma^2 = 0,5$) сформовані, з початкової Гаусової конфігурації, невеликі кластери адсорбату ростуть у розмірах і при великих часах конденсації формують стаціонарну картину морфології поверхні з фіксованою кількістю островів адсорбату різної форми (сферичні і витягнуті кластери). При підвищених значеннях інтенсивності шуму (див. рис. 35, *б* при $\sigma^2 = 2,5$) флюктуації напруженості електричного поля біля підкладинки приводять до збільшення концентрації адсорбату на шарі, і в процесі конденсації взаємодія сформованих кластерів адсорбату приводить до формування відокремлених отворів різної форми всередині матриці адсорбату. Таким чином, флюктуації напруженості електричного поля впливають на динаміку процесів структурування поверхні та керують типом поверхневих структур; а збільшення інтенсивності флюктуацій зовнішнього поля приводить до морфологічної трансформації зростаючої поверхні з відокремлених островів адсорбату на підкладинці до відокремлених отворів всередині матриці адсорбату.

Для детального аналізу впливу флюктуацій напруженості електричного поля біля підкладинки на динаміку структуроутворення далі розглянемо еволюцію середньої концентрації адсорбату на шарі, $\langle x \rangle(t)$ та дисперсії поля концентрації $\langle (dx)^2 \rangle(t)$. Відповідні часові залежності наведено на рис. 36, *a* та рис. 36, *б*, відповідно, при фіксованих значеннях коефіцієнта адсорбції α , енергії взаємодії адсорбату

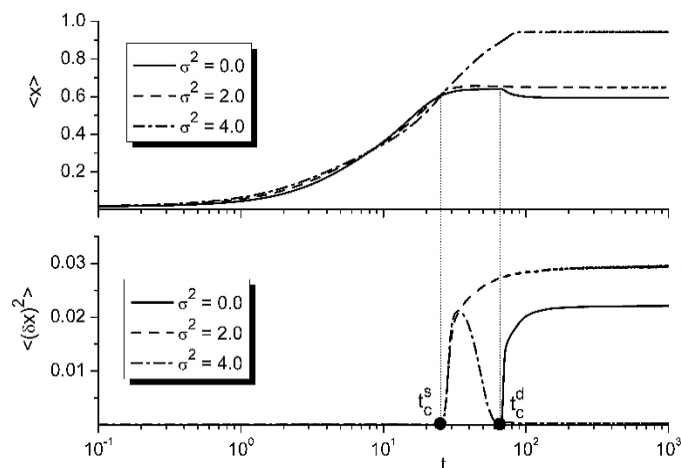


Рис. 36. Еволюція середньої концентрації адсорбату $\langle x \rangle$ та параметра порядку $\langle (\delta x)^2 \rangle$ при $\alpha = 0,2$, $\varepsilon = 3,5$, $u = 1,0$ та різних значеннях інтенсивності флюктуацій напруженості електричного поля σ^2 .³⁶

ε та напруженості електричного поля біля підкладинки (сили анізотропії вертикальної дифузії адатомів між сусідніми шарами) u . Тут динаміку детерміністичної системи показано суцільними кривими. Спочатку проаналізуємо вплив флюктуацій зовнішнього потоку на динаміку середньої концентрації адсорбату, та дисперсії при $\sigma^2 = 2$, що представлено штриховими кривими на рис. 36, а та рис. 36, б, відповідно. Перш за все, слід зазначити, що під час інкубаційного періоду суттєвої різниці в динаміці обох статистичних моментів не спостерігається. Проте, сам інкубаційний час для стохастичного моделю t_c^s є меншим, порівняно із часом t_c^d для детерміністичного моделю (порівняйте суцільну та штрихову криві на рис. 36, б).

Таким чином, врахування флюктуацій напруженості підведеного до підкладинки електричного поля приводить до індукованого шумом пришвидшення процесів упорядкування. Топологія часової залежності дисперсії поля концентрації $\langle (\delta x)^2 \rangle$ у стохастичному моделі з $\sigma^2 = 2$ є подібною до детерміністичного моделю: починаючи з $t = t_c^s$ параметер порядку зростає та досягає свого стаціонарного ненульового значення $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}^s$. При цьому виконання нерівності $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}^s > \langle (\delta x)^2 \rangle_{st}^d$ свідчить про формування більш впорядкованої просторової конфігурації адсорбату на шарі у стохастичному моделі: поверхневі структури стають більш щільними внаслідок формування більш чіткої межі між щільною та розбавленою фазами. Слід

також відмітити, що у стохастичному моделі процеси самоорганізації адсорбату при $t = t_c^s$ не приводять до зменшення концентрації адсорбату, порівняно із детерміністичною системою. При $\sigma^2 = 2$ середня концентрація адсорбату монотонно зростає та, при $t > t_c^s$, досягає стаціонарного значення $\langle x \rangle_{st}^s$ (див. рис. 36, а).

Динаміку обох статистичних моментів при досить великих значеннях інтенсивності шуму $\sigma^2 = 4 > \sigma_{c1}^2$ (див. суцільні криві на рис. 19) наведено штрих-пунктирними кривими на рис. 36, а, б. Видно, що середня концентрація адсорбату монотонно зростає з часом та при тривалій конденсації набуває стаціонарного значення. При цьому, порівнюючи результати для $\sigma^2 = 2$ та $\sigma^2 = 4$ видно, що стаціонарне значення $\langle x \rangle_{st}^s$ збільшується з ростом інтенсивності флюктуацій напруженості підведеного до підкладинки, зовнішнього електричного поля. Динаміка параметра порядку $\langle (\delta x)^2 \rangle$ суттєво відрізняється в обох випадках стохастичного моделю. Не зважаючи на те, що інкубаційний час t_c^s майже не залежить від інтенсивності флюктуацій, параметр порядку збільшується з часом, досягає свого максимального значення та зменшується, приймаючи стаціонарне значення $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}^s = 0$. Останнє свідчить про гомогенізацію розподілу адсорбату на шарі (перехід в область A_{II} на діаграмі стійкості на рис. 19). Таким чином, при великих значеннях інтенсивності флюктуацій напруженості електричного поля можливі тільки перехідні структури: збільшення інтенсивності шуму приводить до розупорядкування системи, тобто стабілізації однорідного стану.

З метою проведення детального дослідження впливу флюктуацій напруженості підведеного до підкладинки електричного поля на стаціонарну картину розподілу адсорбату на шарі проаналізуємо залежності стаціонарних значень середньої концентрації адсорбату $\langle x \rangle_{st}^s$ та параметра порядку $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}^s$ від інтенсивності шуму σ^2 . Одержані результати при фіксованих значеннях коефіцієнта адсорбції $\alpha = 0,2$, сили анізотропії $u = 1,0$ та енергії взаємодії адсорбату $\varepsilon = 3,5$ наведено на рис. 37 з типовими ілюстраціями квазістаціонарного розподілу адсорбату при різних значеннях інтенсивності флюктуацій. Як було показано на рис. 19 та рис. 36 при таких значеннях параметрів системи навіть в детермінованому випадку ($\sigma^2 = 0$) при конденсації внаслідок процесів самоорганізації на поверхні шару формуються стійкі відокремлені структури адсорбату. З рисунку 37 видно, що зі збільшенням інтенсивності флюктуацій $\sigma^2 < \sigma_s^2$ обидва

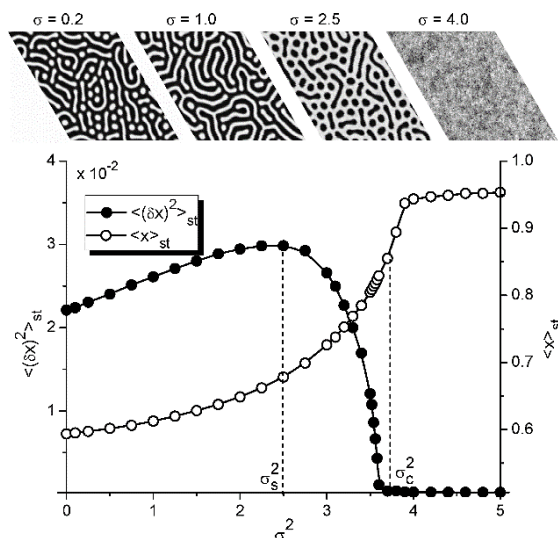


Рис. 37. Залежності стаціонарних значень середньої концентрації адсорбату $\langle x \rangle_{st}$ та параметра порядку $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$ від інтенсивності шуму σ^2 при $\alpha = 0,2$, $u = 1,0$ та $\varepsilon = 3,5$. Зверху представлено ілюстрації квазістаціонарного розподілу адсорбату при різних значеннях інтенсивності флюктуацій.³⁷

стаціонарні значення середньої концентрації $\langle x \rangle_{st}$ та параметра порядку $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$ зростають: відбувається упорядкування просторового розподілу адсорбату зі збільшенням його концентрації. При $\sigma^2 = \sigma_s^2$ параметер порядку досягає максимального значення і потім зменшується при $\sigma^2 < \sigma_c^2$ (див. затушовані кружки на рис. 37). У випадку $\sigma^2 > \sigma_c^2$ маємо $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st} \approx 0$, тоді як стаціонарне значення середньої концентрації адсорбату продовжує зростати зі збільшенням інтенсивності флюктуацій (див. пусті кружки на рис. 37). При великих значеннях інтенсивності шуму його зростання не впливає на величину $\langle x \rangle_{st}$. У верхній панелі на рис. 37 наведено ілюстрації типової картини стаціонарного просторового розподілу адсорбату на шарі.

Видно, що збільшення інтенсивності флюктуацій (зліва направо) приводить до зміни морфології поверхні від відокремлених структур адсорбату до відокремлених отворів в матриці адсорбату (див. знімки при $\sigma^2 = 0,2, 1,0, 2,5$ на рис. 37). При великих значеннях інтенсивності флюктуацій адсорбат з високою концентрацією однорідно розподіляється по шару (див. знімок при $\sigma^2 = 4$ на рис. 37). Слід відзначити, що одержане в рамках процедури числового моделювання критичне значення інтенсивності флюктуацій σ_c^2 добре узго-

джується із результатами лінійного аналізу системи на стійкість (див. діаграму стійкості на рис. 19). Крім того, порівнюючи результати аналізу на стійкість та чисельного моделювання одержуємо $\sigma_m^2 < \sigma_s^2$ (див. рис. 20). Це означає, що максимальне значення показника стійкості $\lambda(\kappa_m)$, що відповідає σ_m^2 , пов'язане з критичним значенням інтенсивності шуму, коли реалізується морфологічне перетворення поверхні. Таким чином, при $\sigma^2 = \sigma_m^2$ на поверхні шару реалізується лабіринтоподібна структура з перколяційними кластерами адсорбату. При цьому найбільш упорядкована структурована поверхні реалізується при $\sigma^2 = \sigma_s^2$, коли всередині матриці адсорбату утворюються відокремлені отвори (див. знімок при $\sigma^2 = 2,5$ у верхній панелі на рис. 37).

Далі розглянемо випадок $\alpha = 0,2$, $u = 1,0$ та $\varepsilon = 3,2$. Як було показано при лінійному аналізі (див. штрихові криві на рис. 19), при такому наборі параметрів системи збільшення інтенсивності флюктуацій σ^2 приводить до переходу з області однорідного розподілу адсорбату з малою концентрацією (область A_I) до області формування стійких просторових структур (область B) при $\sigma^2 = \sigma_p^2$ та до області однорідного розподілу адсорбату з високою концентрацією (область A_{II}) при $\sigma^2 = \sigma_{c2}^2$. Результати числових симуляцій щодо залежності стаціонарної концентрації адсорбату $\langle x \rangle_{st}$ та стаціонарного значення параметра порядку $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$ наведено на рис. 38. З рисунку видно,

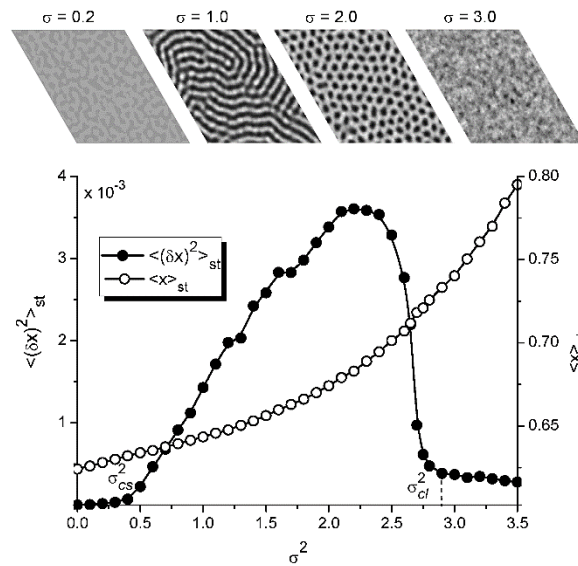


Рис. 38. Залежності стаціонарних значень середньої концентрації адсорбату $\langle x \rangle_{st}$ та параметра порядку $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$ від інтенсивності шуму σ^2 при $\alpha = 0,2$, $u = 1,0$ та $\varepsilon = 3,2$. Зверху представлено ілюстрації квазістаціонарного розподілу адсорбату при різних значеннях інтенсивності флюктуацій.³⁸

що стаціонарне значення середньої концентрації адсорбату монотонно зростає зі збільшенням інтенсивності шуму (див. пусті кружки на рис. 38). Залежність стаціонарного значення параметра порядку від інтенсивності шуму (див. затушовані кружки на рис. 38) ілюструє, описану в розділі аналізу на стійкість, реверсивну картину упорядкування. У детерміністичному моделі та при малих значеннях інтенсивності шуму, при $\sigma^2 < \sigma_{cs}^2$, для параметра порядку маємо $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st} \approx 0$. Тут адсорбат однорідно розподіляється по шарові без будь-яких стійких просторових структур (див. ілюстрацію просторового розподілу адсорбату на верхній панелі рис. 38 при $\sigma^2 = 0,2$). При $\sigma_{cs}^2 < \sigma^2 < \sigma_{cl}^2$ стаціонарне значення параметра порядку починає зростати зі збільшенням інтенсивності флюктуацій, досягає максимального значення та спадає (див. затушовані кружки на рис. 38). При цьому морфологія поверхня змінюється з відокремлених структур адсорбату до відокремлених отворів в матриці адсорбату (див. ілюстрації розподілів адсорбату при $\sigma^2 = 1$ та $\sigma^2 = 2$ на верхній панелі на рис. 38). При великих значеннях інтенсивності флюктуацій ($\sigma^2 > \sigma_{cl}^2$) шум приводить до гомогенізації розподілу адсорбату (див. ілюстрацію розподілу адсорбату при $\sigma^2 = 3$ на верхній панелі на рис. 38). Таким чином, проведені числові симуляції узгоджуються з результатами лінійного аналізу на стійкість, проведеного у попередньому розділі, щодо індукованих шумом реверсивних процесів структурування поверхні.

Далі проаналізуємо кореляційні властивості квазістаціонарних розподілів адсорбату при різних значеннях флюктуацій напруже-

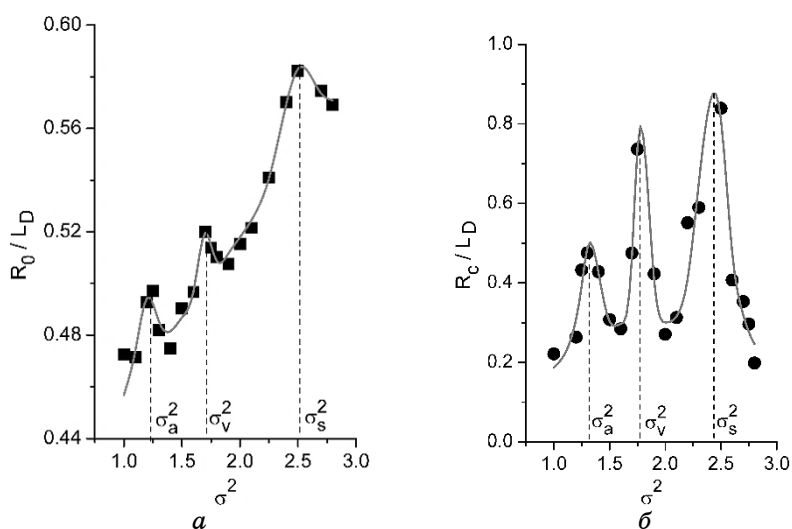


Рис. 39. Залежності періоду просторових збурень R_0 (а) та кореляційного радіуса R_c (б) від інтенсивності флюктуацій σ^2 при $\alpha = 0,2$, $u = 1,0$, $\varepsilon = 3,5$.³⁹

ності електричного поля, підведеного до підкладинки, аналізуючи двоточкову автокореляційну функцію (20) та розраховуючи радіус кореляції R_c та період просторових збурень R_0 при різних значеннях інтенсивності флюктуацій σ^2 . Одержані результати представлено на рис. 39, а, б.

На рисунку 40 наведено типові ілюстрації стаціонарних просторових розподілів адсорбату при різних значеннях інтенсивності флюктуацій та фіксованих $\alpha = 0,2$, $u = 1,0$ та $\varepsilon = 3,5$.

З одержаних результатів видно, що з ростом інтенсивності флюктуацій період просторових збурень R_0 зростає немонотонним чином. На залежності $R_0(\sigma^2)$ видно три піки, що знаходяться при σ_a^2 , σ_v^2 та σ_s^2 (див. рис. 39, а). Залежність $R_c(\sigma^2)$ на рис. 39, б також характеризується наявністю трьох піків при тих самих значеннях інтенсивності флюктуацій σ^2 . Останній пік при $\sigma^2 = \sigma_s^2$ відповідає максимальному значенню стаціонарного параметра порядку $\langle(\delta x)^2\rangle_{st}$ (див. рис. 37). Аналізуючи залежності $R_0(\sigma^2)$ та $R_c(\sigma^2)$ та зміну морфології поверхні при збільшенні інтенсивності флюктуацій, показані на рис. 40, можна зробити висновок, що при $\sigma^2 = \sigma_a^2$ реалізується морфологічний перехід у просторовому розподілі адсорбату від відокремлених структур адсорбату до лабіринтоподібної структури з перколювальними кластерами адсорбату (див. знімки при $\sigma^2 = 0,75$ та $\sigma^2 = 1,5$ на рис. 40). При перебільшенні інтенсивністю флюктуацій значення $\sigma^2 = \sigma_v^2$ адсорбат самоорганізується з формуванням відокремлених отворів в матриці адсорбату (пор. знімки при $\sigma^2 = 1,75$ та $\sigma^2 = 2,0$ на рис. 40). Варто відзначити, що критичне значення σ_a^2 , яке відповідає за зміну морфології поверхні від відокремлених структур адсорбату через лабіринтоподібну структуру

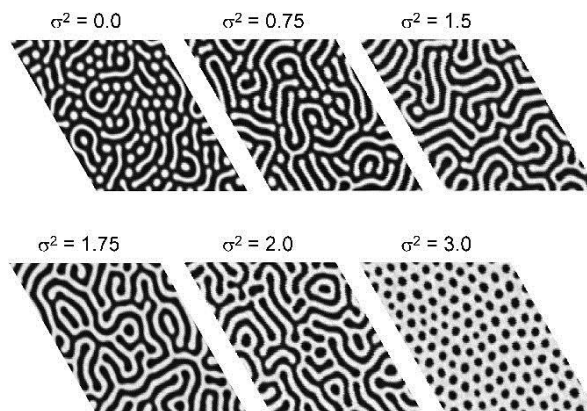


Рис. 40. Типові ілюстрації стаціонарних просторових розподілів адсорбату при різних значеннях інтенсивності флюктуацій σ^2 при $\alpha = 0,2$, $u = 1,0$, $\varepsilon = 3,5$.⁴⁰

до відокремлених отворів в матриці адсорбату, добре узгоджується із значенням σ_m^2 , одержаним в рамках лінійного аналізу на стійкість, проведеного у попередньому розділі, коли показник стійкості $\lambda(\kappa_m)$ приймає максимальне значення (див. вставку на рис. 20).

Далі проаналізуємо зміну кількості поверхневих структур (островів адсорбату та отворів) N та їх розміру при збільшенні інтенсивності флюктуацій. Для розрахунку розміру структур будемо аналізувати середню площу відповідних структур $\langle S \rangle$. Одержані результати наведено на рис. 41, *а, б*. Спочатку розглянемо випадок малих значень інтенсивності шуму $\sigma^2 < \sigma_a^2$, коли у процесі конденсації формуються відокремлені структури адсорбату. Відповідні результати показано кривими із затушованими кружками та затушованими квадратами на рис. 41, *а, б*. З рисунків видно, що зі збільшенням значення інтенсивності флюктуацій середня площа островів адсорбату монотонно зростає, а їх кількість зменшується.

Таким чином, індуковані флюктуаціями процеси взаємодії островів адсорбату між собою приводять до формуванням видовжених структур адсорбату з подальшим формуванням перколювального кластера адсорбату. Такі кластери можливі, коли інтенсивність флюктуацій σ^2 приймає значення з інтервалу (σ_a^2, σ_v^2) . При $\sigma^2 > \sigma_v^2$ просторова конфігурація адсорбату представляє собою матрицю з відокремленими отворами всередині. При чому, середня площа таких отворів монотонно зменшується з ростом інтенсивності флюктуацій (див. криву з пустими кружечками на рис. 41, *а*), тоді як кіль-

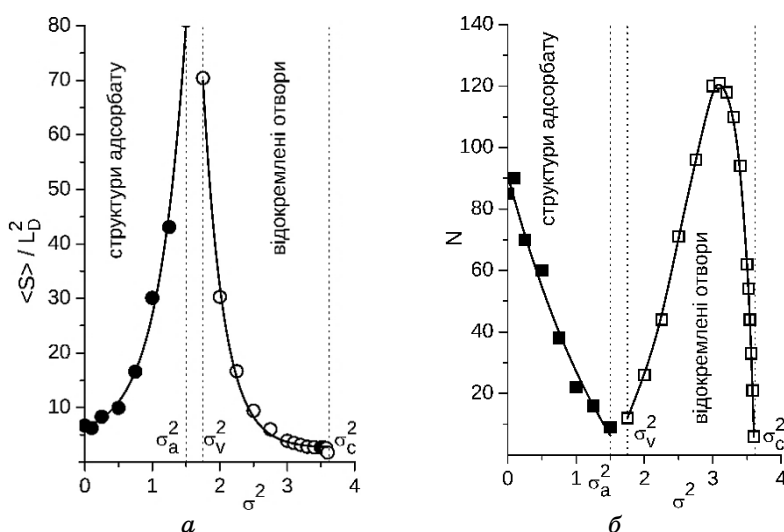


Рис. 41. Залежності середньої площі поверхневих структур (*а*) та їх кількості (*б*) від інтенсивності флюктуацій σ^2 при: $\alpha = 0,2$, $u = 1,0$, $\varepsilon = 3,5$.⁴¹

кість отворів зростає, набуває максимального значення та згодом зменшується з $\sigma^2 < \sigma_c^2$ (див. криву з пустими квадратами на рис. 41, б). Така немонотонна поведінка кількості отворів свідчить, що при збільшенні інтенсивності флюктуацій від σ_v^2 приводить до організації (виділенню) отворів великого розміру, згодом їх кількість зростає, тоді як середній розмір зменшується. При підвищених значеннях інтенсивності флюктуацій малі отвори, розмір яких не перевищує певне критичне значення, стають нестійкими, і загальна кількість отворів зменшується. Цей результат добре узгоджується із зростаючою залежністю стаціонарного значення середньої концентрації адсорбату $\langle x \rangle_{st}$ від інтенсивності флюктуацій σ^2 (див. рис. 37).

Досі ми досліджували вплив інтенсивності зовнішніх флюктуацій напруженості електричного поля біля підкладинки на динаміку формування поверхневих структур та їх статистичні властивості при фіксованих параметрах системи. У той же час відповідно до побудованого моделю росту наноструктурованих тонких плівок при конденсації у системах «плазма–конденсат» інтенсивність флюктуацій σ^2 напруженості електричного поля є пропорційною до середнього значення цієї напруженості u . Таким чином, в реальному експерименті зростання середньої величини напруженості поля приводить до зростання інтенсивності її флюктуацій. Проведений у попередньому розділі аналіз досліджуваної системи на стійкість та проведені у цьому розділі числові симуляції показують, що одночасне збільшення як u , так і σ^2 всередині області B на рис. 19 забезпечить формування стійких поверхневих структур під час осадження. Виявлене індукване шумом морфологічне перетворення в структурі шару від відокремлених структур адсорбату на поверхні підкладинки до відокремлених отворів в матриці адсорбату вказує на те, що формування відокремлених компактних островів адсорбату при фіксованих інших параметрах системи, буде реалізовуватись при значеннях напруженості електричного поля u та інтенсивності його флюктуацій σ^2 поблизу верхньої границі області B (див. зліва на рис. 19). При подальших розрахунках зафіксуємо $\alpha = 0,2$ й $\varepsilon = 3,5$ (суцільні прямі на рис. 19 зліва) та сконцентруємо нашу увагу на встановленні впливу відношення інтенсивності флюктуацій напруженості електричного поля до його середнього значення σ^2/u (NOSr — від noise-over-signal ratio) на зміну статистичних властивостей відокремлених структур адсорбату, враховуючи функціональну залежність $\sigma^2 = au - b$ при $u \geq 2,5$ (див. пунктирну пряму на рис. 19 зліва); a та b певні константи.

Спочатку проаналізуємо вплив NOSr на динаміку формування поверхневих структур та ступінь порядку в просторовому розподілі поля покриття в досліджуваній системі «плазма–конденсат». На рисунку 42, a наведено типові квазістаціонарні знімки морфології

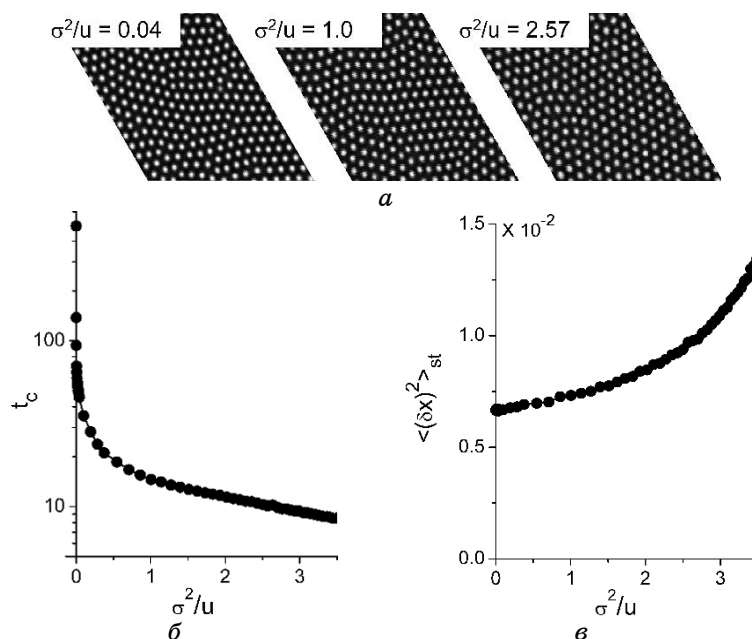


Рис. 42. Типові ілюстрації морфології поверхні при різних значеннях відношення σ^2/u (а). Залежності (б) інкубаційного періоду t_c та (в) стаціонарного значення параметра порядку $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$ від співвідношення σ^2/u .⁴²

поверхні при різних значеннях NOSr σ^2/u . Звідси випливає, що у випадку функціональної залежності інтенсивності флюктуацій зовнішнього потоку σ^2 від його сили u морфологія поверхні залишається незмінною: існування відокремлених кластерів адсорбату сферичної форми.

На рисунку 42, б наведено залежність моменту часу t_c , що визначає тривалість інкубаційного періоду та початок процесів формування островів, від співвідношення σ^2/u . З рисунку видно, що у порівнянні з детермінованим випадком з $\sigma^2/u = 0$ збільшення NOSr приводить до зменшення значення часу t_c , що означає прискорення процесів упорядкування (структурування поверхні). При великих значеннях σ^2/u момент часу t_c незначно зменшується з ростом NOSr. Аналогічний результат був знайдений при фіксованому u шляхом збільшення інтенсивності шуму σ^2 (див. рис. 36). Однак у цьому випадку таке прискорення було пов'язане з флюктуаційно-індукованим перетворенням морфології поверхні від розділених кластерів адсорбату до розділених отворів всередині матриці адсорбату. У випадку функціональної залежності інтенсивності шуму σ^2 від середнього значення сили анізотропії u морфологія поверхні залишається незмінною (див. рис. 42, а). Отже, пришвидшення процесів упорядкування, що ілюструє рис. 42, б, пов'язано зі зростаючим впливом як детерміно-

ваної, так і стохастичної частин зовнішнього потоку, викликаного наявністю електричного поля поблизу підкладинки.

На рисунку 42, в наведено розраховану залежність стаціонарного значення параметра порядку u у квазістаціонарному випадку $\langle(\delta x)^2\rangle_{st}$ від співвідношення σ^2/u . З нього випливає, що параметер порядку монотонно зростає зі збільшенням σ^2/u . Останнє свідчить про формування більш впорядкованої (добре структурованої) поверхні при більших значеннях σ^2/u . Цей ефект також пов'язаний із одночасним впливом як сили анізотропії в переходах адатомів між шарами, так і її флюктуаціями, а не з морфологічними трансформаціями поверхні, як це було у випадку постійного значення u (див. рис. 37 та рис. 38).

Далі проаналізуємо еволюцію середнього розміру сферичних структур адсорбату при зміні співвідношення σ^2/u . Розрахунок лінійного розміру R кожного кластера адсорбату будемо проводити, використовуючи співвідношення $R = \sqrt{S/\pi}$. Динаміку усередненого лінійного розміру $\langle R \rangle$ по всіх структурах адсорбату для детермінованої (порожні квадрати) та стохастичної (заповнені квадрати) систем показано на рис. 43.

Тут час відраховується від відповідного значення t_c (після закінчення інкубаційного періоду), яке падає з ростом відношенням σ^2/u (див. рис. 42, б). На залежності $\langle R \rangle(t)$ можна виділити чотири різних етапи

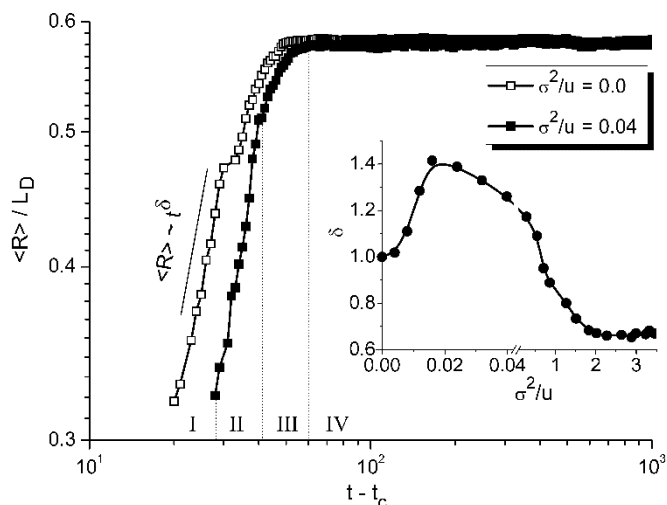


Рис. 43. Еволюція середнього лінійного розміру островів адсорбату $\langle R \rangle$ в одиницях дифузійної довжини, розрахованого після закінчення інкубаційного періоду t_c при різних значеннях співвідношення σ^2/u . На вставці наведено залежність показника росту середнього розміру δ від σ^2/u .⁴³

еволюції середнього радіуса (див. криву з заповненими квадратами на рис. 43): формування островів адсорбату (I); стадія росту (II); стадія огрубіння (III); квазістаціонарний режим еволюції середнього розміру островів адсорбату (IV). Варто зазначити, що стадія росту характеризується степеневою асимптотикою $\langle R \rangle(t) \propto t^\delta$ з показником росту δ . Як було показано вище, для детермінованої системи з $\sigma^2 = 0$ показник росту приймає значення 1, що свідчить про реалізацію лінійного закону росту середнього розміру островів адсорбату (див. криву з пустими квадратами на рис. 43). У стохастичній системі зміна значення співвідношення σ^2/u приводить до зміни в значенні показника росту середнього розміру структур δ , як це показано на вставці на рис. 43. Збільшення відношення σ^2/u забезпечує збільшення показника росту до $\delta \approx 1,4$, що означає прискорення процесів росту лінійного розміру структур адсорбату за рахунок сумісного впливу як сили анізотропії, так і інтенсивності її флюктуацій. З подальшим зростанням співвідношення значення σ^2/u показник росту δ приймає менші значення та при великих $\sigma^2/u > 2$ залишається не змінним, приймаючи значення $\delta \approx 0,65$ (див. вставку на рис. 43). Таким чином, відношення σ^2/u визначає динаміку росту середнього розміру структур адсорбату лише при невеликих значеннях інтенсивності флюктуацій $\sigma^2 < 2u$.

Далі розглянемо вплив зовнішнього потоку, викликаного електричним полем, на середній розмір відокремлених островів адсорбату у квазістаціонарному режимі. Відповідні результати показані на рис. 44. На рисунку 44, а показано розподіл островів адсорбату за

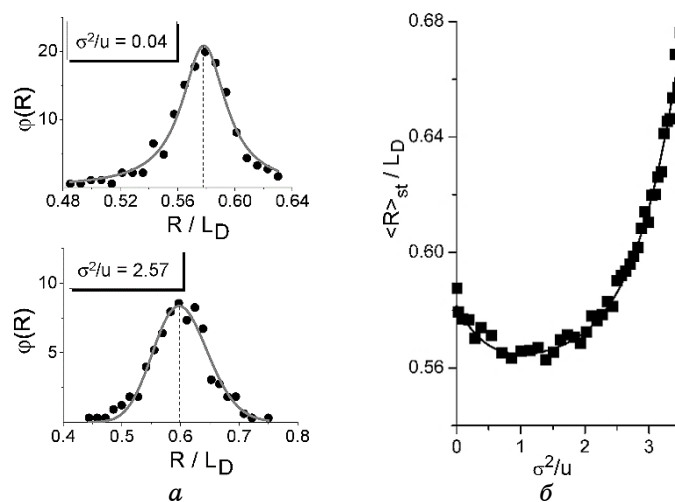


Рис. 44. Розподіли структур адсорбату за розмірами у квазістаціонарному режимі при різних значеннях співвідношення σ^2/u (а) та залежність середнього стаціонарного значення лінійного розміру структур адсорбату $\langle R \rangle_{st}$ від σ^2/u .⁴⁴

розмірами при малих ($\sigma^2/u = 0,04$) та великих ($\sigma^2/u = 2,57$) значеннях NOSr: символи відповідають числовим даним, які добре узгоджуються з розподілом Лоренца, показаним кривими.

Видно, що збільшення відношення σ^2/u приводить до збільшення ширини розподілу (дисперсії) $\varphi(R)$. Останнє свідчить про те, що острови адсорбату характеризуються різними розмірами. Крім того, найбільш ймовірне значення розміру острова адсорбату, що відповідає максимальному значенню $\varphi(R)$ (показано пунктирними лініями на рис. 44, а) збільшується зі зростанням співвідношення σ^2/u . Детальний аналіз впливу співвідношення σ^2/u на середній розмір островів адсорбату дозволяє одержати залежність $\langle R \rangle_{st}(\sigma^2/u)$, показану на рис. 44, б. Видно, що з ростом σ^2/u величина $\langle R \rangle_{st}$ зменшується, досягає мінімального значення при $\sigma^2/u \approx 1$ і потім монотонно збільшується. Таким чином, спільний вплив детермінованої та стохастичної частин зовнішнього потоку при формуванні відокремлених островів адсорбату керує динамікою формування структур, впорядкованістю зростаючої поверхні, законом зростання середнього розміру островів адсорбату то його стаціонарним значенням.

5.4. Багатошарове подання результатів одношарового наближення

Представлені результати відповідають процесам формування структур на проміжному n -му шарі системи з N шарів. Згідно з побудованим моделюванням ширина тераси багатошарової пірамідальної структури, побудованої з усіх відокремлених структур, визначається параметром Δ , який для конкретного випадку обчислювальної ґратки лінійного розміру $L_0 = 256$ і фіксованого $\beta = 0,1$ дає $\Delta = 13$ в одиницях ґратки. Для визначення значення ширини тераси d для кожної пірамідальної багатошарової структури (див. рис. 1) в одиницях обчислювальної сітки будемо діяти у наступний спосіб. Згідно з визначенням загальної площі, займаної адсорбатом на n -му шарі, $S_n = \pi r_n^2$, для відповідної загальної площі на попередньому ($n - 1$)-му шарі маємо $S_{n-1} = \pi r_{n-1}^2$, причому $r_{n-1} = r_n + \Delta$. Це дає:

$$S_{n-1} = S_n + 2\Delta\sqrt{\pi S_n} + \pi\Delta^2. \quad (21)$$

З іншого боку, лінійний розмір кожної i -ї пірамідальної структури r_{ni} зменшується з ростом номеру шару n на величину ширини тераси d наступним чином: $r_{n-1,j} = r_{n,j} + d$ (див. рис. 1). Таким чином, площа, яку займає кожна i -та структура на $(n - 1)$ -му рівні визначається з рівняння: $s_{n-1,i} = s_{n,i} + 2d\sqrt{\pi s_{n,i}} + \pi d^2$. Беручи суму за всіма M структурами одержуємо:

$$S_{n-1} = S_n + 2d \sum_i^M \sqrt{\pi s_{ni}} + M\pi d^2. \quad (22)$$

Розв'язавши рівняння (21) і (22), встановимо ширину тераси кожної пірамідальної структури d як розв'язок квадратного рівняння:

$$d = \frac{1}{\pi M} \left\{ \left[\left(\sum_{i=1}^M \sqrt{\pi s_{ni}} \right)^2 + \pi M \left(2\Delta \sqrt{\pi S_n} + \pi \Delta^2 \right) \right]^{1/2} - \sum_{i=1}^M \sqrt{\pi s_{ni}} \right\}. \quad (23)$$

Таким чином, використовуючи обчислені значення площ кожної структури s_{ni} та загальне число структур M , можна встановити значення ширини тераси d в одиницях розміру обчислювальної ґратки L_0 і побудувати багатошарову систему з N шарів, де лінійний розмір кожної i -ї структури зменшується на d зі зростанням номеру шару n . Для досліджуваного випадку $L_0 = 256$ і $\beta = 0,1$ з рівняння (23) одержуємо $d = 1$. При відтворенні багатошарової структури будемо враховувати, що перший шар повністю зайнятий адсорбатом, а найвищий шар характеризується структурами адсорбату з лінійним розміром, рівним ширині тераси d . Типові результати для двовимірних структур на проміжному n -му шарі та відповідних побудованих N -шарових структур з шириною тераси $d = 1$ при різних значеннях сили анізотропії u наведено на рис. 45, де вказано номер поточного шару n для двовимірного представлення та загальну можливу кількість шарів N у багатошарових структурах. Таким чином, варіюючи параметри моделю можна одержати багатошарові отвори в матриці

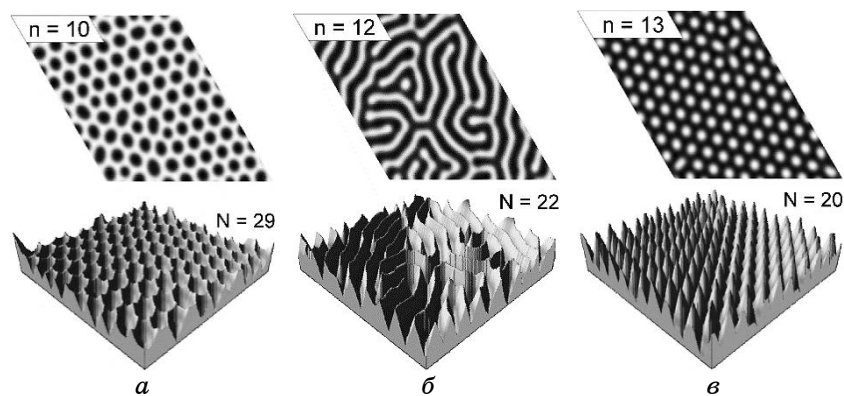


Рис. 45. Типові ілюстрації поверхневих структур при $L_0 = 256$, $\beta = 0,1$, $\alpha = 0,15$, $\varepsilon = 3,2$, $\sigma^2 = 0$, $\Sigma = 0$ та: *a*) $u = 0,4$, *б*) $u = 0,5$ та *в*) $u = 0,6$. Верхній рядок — двовимірні структури на n -тому шарі багатошарової системи; нижній рядок — сконструйовані багатошарові структури в системі з загальною кількістю N шарів.⁴⁵

адсорбату (рис. 45, а), лабіринтоподібні структури (рис. 45, б) та відокремлені конусоподібні структури адсорбату (рис. 45, в).

Для проведення оцінки одержаних даних щодо лінійного розміру поверхневих структур використаємо формулу для визначення дифузійної довжини $L_D = \sqrt{k_{\leftrightarrow} / k_d^0} = a^2 \exp([E_d - E_D] / T)$ та відомі експериментальні дані [80]: $E_D = 0,24$ еВ та $E_d = 0,44$ еВ. Для реальних значень температури всередині камери $T = 773$ К одержуємо $L_D \approx 50$ нм. Таким чином, для результатів щодо лінійного розміру структур адсорбату/отворів на рис. 41, а маємо $\langle R_a \rangle \in 63\text{--}90$ нм (для відокремлених кластерів адсорбату) та $\langle R_v \rangle \in 40\text{--}90$ нм (для відокремлених отворів всередині матриці адсорбату) на приблизно половині висоти зростаючої поверхні. Для результатів щодо лінійного розміру структур з рис. 44, б маємо $R \in 28\text{--}35$ нм. Одержані дані добре узгоджуються з експериментально спостережуваними величинами щодо розмірів поверхневих структур при конденсації [80–83].

6. ПРОСТОРОВО-ЧАСОВА ЕВОЛЮЦІЯ АДСОРБАТУ ПРИ БАГАТОШАРОВІЙ КОНДЕНСАЦІЇ

У попередніх розділах нами було досліджено просторово часову еволюцію адсорбату на виділеному (середньому) шарі багатошарової системи. Для більш детального аналізу процесів перерозподілу адсорбату на кожному рівні у цьому розділі будемо проводити числове моделювання процесу росту багатошарових структур, розглядаючи систему з семи шарів, вважаючи що останній сьомий шар представляє газову фазу.

6.1. Багатошаровий модель системи «плазма–конденсат»

Безрозмірний модель багатошарової конденсації (1) в системі «плазма–конденсат» набуває наступного вигляду:

$$\begin{aligned} \partial_t x_1 = & \alpha(1-x_1)(1-x_2) - x_1(1-x_2)e^{-2\epsilon x_1} + D_b(x_2-x_1) - \\ & - u x_1(1-x_2) + \nabla \left[\nabla x_1 - \epsilon \mu(x_1) \nabla \left\{ x_1 + (1 + \rho_0^2 \nabla^2)^2 x_1 \right\} \right] + \xi_1(\mathbf{r}, t); \end{aligned} \quad (24)$$

$$\begin{aligned} & \vdots \\ \partial_t x_n = & \alpha x_{n-1}(1-x_n)(1-x_{n+1}) - x_n(1-x_{n+1})e^{-2\epsilon x_n x_{n-1}} + \\ & + D_b(x_{n+1} + x_{n-1} - 2x_n) + u \left[x_{n-1}(1-x_n) - x_n(1-x_{n+1}) \right] + \\ & + \nabla \left[\nabla x_n - \epsilon \mu(x_n) x_{n-1} \nabla \left\{ x_n + (1 + \rho_0^2 \nabla^2)^2 x_n \right\} \right] + \xi_n(\mathbf{r}, t); \end{aligned} \quad (25)$$

$$\begin{aligned} & \vdots \\ \partial_t x_N &= \alpha(1 - x_N) - x_N e^{-2\epsilon x_N x_{N-1}} + D_b(x_{N-1} - x_N) + u x_{N-1}(1 - x_N) + \\ & + \nabla \left[\nabla x_N - \epsilon \mu(x_N) x_{N-1} \nabla \left\{ x_N + (1 + \rho_0^2 \nabla^2) x_N \right\} \right] + \xi_N(r, t). \end{aligned} \quad (26)$$

Тут ми ввели флюктуаційні складові ξ_n для забезпечення статистичного опису динаміки системи. Ці стохастичні джерела вибрані у вигляді адитивних Гаусових статистично незалежних шумів з властивостями: $\langle \xi_n \rangle = 0$, $\langle \xi_n(\mathbf{r}, t) \xi_m(\mathbf{r}', t') \rangle = \delta_{n,m} \delta(t - t') \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$. Слід зазначити, що у даному випадку концентрація адсорбату на кожному n -тому шарі розраховується безпосередньо з відповідного еволюційного рівняння. Таким чином, ширина тераси багат шарових пірамідальних структур не є певним параметром системи (параметер β у дослідженнях в рамках одношарового наближення), а визначатиметься значеннями основних параметрів системи, що зводяться до коефіцієнта адсорбції α , енергії взаємодії адсорбату ϵ та сили анізотропії u . Для проведення відповідних розрахунків у якості початкових умов покладемо: $\langle x_n(\mathbf{r}, 0) \rangle = \langle (\delta x_n(\mathbf{r}, 0))^2 \rangle = 0$ для $n = 2, \dots, N$; $\langle x_1(\mathbf{r}, 0) \rangle = 0$, $\langle (\delta x_1(\mathbf{r}, 0))^2 \rangle = 0, 1$, враховуючи $x_1(\mathbf{r}, 0) \geq 0$.

6.2. Динаміка росту багат шарових структур

Типові ілюстрації еволюції системи наведено на рис. 45. Видно, що з плином часу на підкладці реалізуються різні типи поверхневих структур: за умови невисокої сили анізотропії u концентрація адсорбату в системі є великою і, як наслідок, реалізуються лабіринтоподібна структура адсорбату з відокремленими отворами (структурами вакансій), що представлено на рис. 45, *а*. При підвищених значеннях напруженості електричного поля біля підкладки пришвидшений рух адатомів з нижніх шарів до верхніх приводить до формування відокремлених багат шарових структур адсорбату, що представлено на рис. 45, *б*.

Розглянемо еволюцію середньої концентрації адатомів на кожному шарі $\langle x_n \rangle$ та відповідної дисперсії $\langle (\delta x_n)^2 \rangle$, показані на рис. 46. Тут пронумеровані криві відносяться до середньої концентрації адсорбату (рис. 46, *а*) та дисперсії (рис. 46, *б*) на відповідному шарі. З рисунків видно, що перший шар (крива 1 на рис. 46, *а*) зростає від початку процесу конденсації. При цьому дисперсія $\langle (\delta x_1)^2 \rangle \approx 0$ протягом інкубаційного періоду t_c^1 (див. криву 1 на рис. 46, *б*). Коли досягається необхідне пересичення адсорбатом на першому шарі, адсорбат починає взаємодіяти, утворюючи відокремлені структури адсорбату (див. рис. 45, *б* при $t = 10$). Ненульова концентрація на другому шарі з'являється після певного інкубаційного періоду, необхідного для агломерації адатомів на першому шарі в щільну фазу, що відіграє

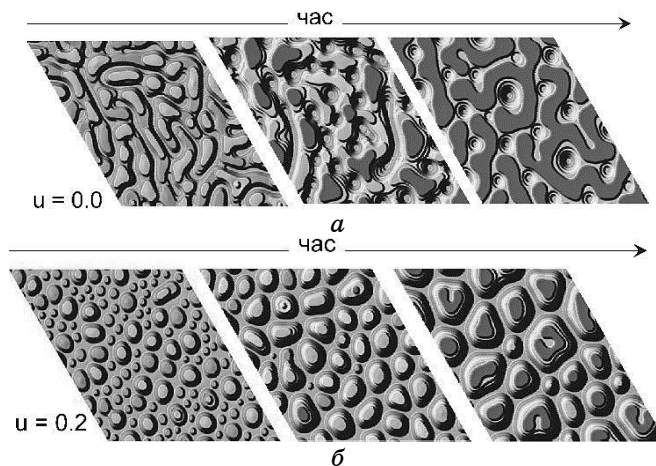


Рис. 46. Типові ілюстрації динаміки росту багатошарових поверхневих структур при конденсації при $\alpha = 0,2$, $\varepsilon = 4,0$.⁴⁶

роль субстрату (підкладинки) для утворення наступного шару. Цей процес повторюється для наступних шарів (див. рис. 45, б при $t = 50$ та $t = 100$). Як було показано вище, формування структур (островів адсорбату) на будь-якому $(n + 1)$ -му шарі можливе при досягненні критичної концентрації адсорбату на даному шарі та реалізації відповідного розміру островів адсорбату на n -му шарі [47, 73].

Розглядаючи динаміку дисперсій на кожному шарі $\langle(\delta x_n)^2\rangle$ (див. рис. 46, б) що відображає процес структуроутворення, виявляється, що для нижніх шарів (першого і другого) дисперсія зростає, досягає максимального значення, а потім зменшується до стаціонарного значення, яке визначається основними параметрами системи. Зростання дисперсії означає утворення відокремлених структур на відповідному шарі (див. рис. 45, б при $t = 10$). Зменшення $\langle(\delta x_n)^2\rangle$ пов'язано з взаємодією кластерів адсорбату, і, як наслідок, з формування структур адсорбату великих розмірів. Ці структури відіграють роль субстрату для утворення щільної газової фази атомів над ними. При конденсації адатомів з цієї фази утворюється другий шар адсорбату. Причому морфологія структур адсорбату на кожному наступному шарі повторює просторовий розподіл адсорбату на попередньому шарі. Цей сценарій повторюється для наступних шарів, і в результаті формуються багатошарові поверхневі структури. Дисперсія для верхніх шарів монотонно зростає до стаціонарного ненульового значення. При тривалій конденсації (на великих часових інтервалах) як концентрація адсорбату, так і відповідна дисперсія на кожному шарі багатошарової системи досягають своїх стаціонарних значень. Оскільки стаціонарна концентрація адсорбату на кожному новому шарі менше, ніж на попередньому (рис. 46, а) то в ре-

зультаті конденсації формуються пірамідально подібні структури адсорбату (див. рис. 45, б при $t = 1000$). В той же час шляхом порівняння стаціонарних значень дисперсії з рис. 46, б виявляється, що вона змінюється з номером шару немонотонним чином, приймаючи максимальне значення для проміжного шару (крива 3).

6.3. Стаціонарний режим

Далі проаналізуємо вплив основних параметрів системи на стаціонарні значення середньої концентрації адсорбату $\langle x_n \rangle_{st}$ та параметра порядку $\langle (\delta x_n)^2 \rangle_{st}$ та морфологію зростаючої поверхні при конденсації. Спочатку розглянемо вплив коефіцієнта адсорбції α , пов'язаного з тиском газу в камері. Відповідні залежності показано на рис. 47, а при різних α . Видно, що з підвищенням тиску конденсовані атоми взаємодіють, утворюючи острови з декількома шарами (пор. знімки при $\alpha = 0,11$ та $0,15$). При подальшому збільшенні тиску газової фази розмір островів адсорбату збільшується, і разом зі структурами адсорбату утворюються відокремлені отвори — острови вакансій (пор. знімки при $\alpha = 0,15$ та $0,2$). При підвищених значеннях α у стаціонарному режимі реалізуються лабіринтоподібні острови адсорбату з отворами всередині них (див. знімок при $\alpha = 0,25$).

Відповідні залежності $\langle x_n \rangle_{st}$ та $\langle (\delta x_n)^2 \rangle_{st}$ від номеру шару показано на рис. 47, б, в відповідно для різних значень коефіцієнта адсорбції. Тут концентрація адсорбату стає нижче з ростом номеру шару і збільшується з ростом тиску газової фази. Значення дисперсії від шару до

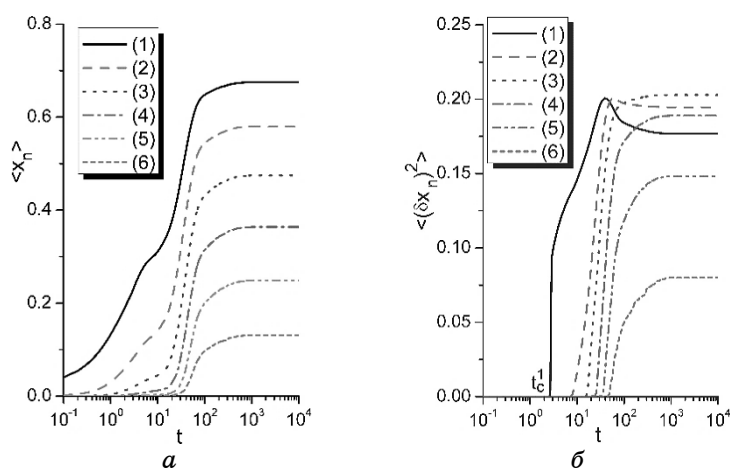


Рис. 47. Часові залежності середньої концентрації адсорбату $\langle x_n \rangle$ (а) та дисперсії поля концентрації $\langle (\delta x_n)^2 \rangle$ (б) на кожному n -му шарі багат шарової системи при $\alpha = 0,2$, $\varepsilon = 4,0$, $u = 0,3$.⁴⁷

шару збільшується зі збільшенням номеру шару за рахунок утворення островів адсорбату на цих шарах і зменшується на верхніх шарах в залежності від значень α . Це означає, що острови адсорбату стають меншими на верхніх шарах. При малих α на нижніх шарах утворюються щільні острови адсорбату з високими значеннями відповідних дисперсій (суттєва різниця у концентрації адсорбату в острові та поза ним), тоді як на верхніх шарах реалізується лише розріджена фаза атомів, які рухаються до поверхні для адсорбції. Тому, дисперсії у верхніх шарах досягають малих стаціонарних значень. Зменшення $\langle(\delta x_6)^2\rangle_{st}$ при $\alpha = 0,2$ та $\alpha = 0,25$ у верхніх шарах додатково пов'язано з утворенням островів вакансій (отворів в матриці адсорбату).

Далі проаналізуємо можливість контролю динамікою структурування поверхні та її морфологією у стаціонарному режимі за рахунок енергії взаємодії адсорбату ε . Для цього зафіксуємо параметри α та u . Відповідні результати представлено на рис. 48. Порівнюючи знімки стаціонарного розподілу адсорбату на підкладинці (див. рис. 48, а), можна бачити, що при малих ε (слабка взаємодія адатомів) структурування можливе лише на першому шарі. Відповідна стаціонарна концентрація адсорбату швидко зменшується з ростом номеру шару (див. криву з квадратами на рис. 48, б). Тут $\langle x_n \rangle$ при $n > 2$ позначає лише концентрацію атомів у газовій фазі поблизу островів адсорбату на першому шарі.

Відповідна дисперсія приймає стаціонарне ненульове значення лише для першого шару. Останнє свідчить про можливість формування структур лише на першому шарі (рівновісні острови адсорбату з малим лінійним розміром при $\varepsilon = 3,0$ на рис. 48, а). Зі збільшенням

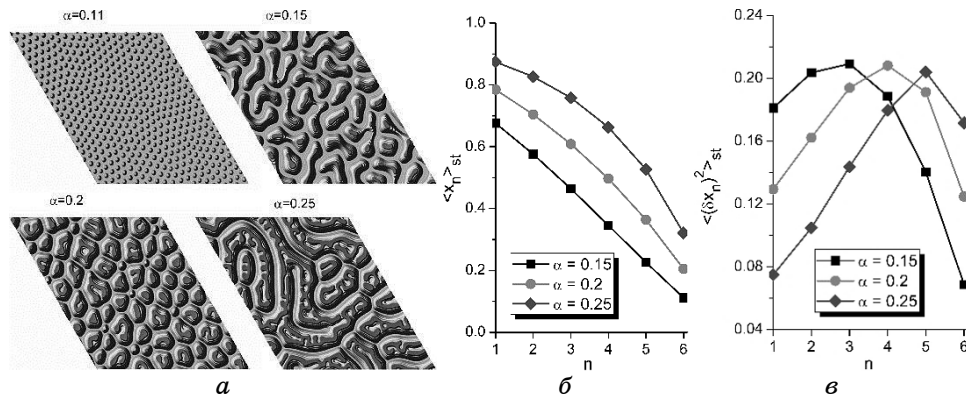


Рис. 48. Типові ілюстрації зміни стаціонарної морфології поверхні при різних значеннях коефіцієнта адсорбції (а). Рисунки (б) та (в) ілюструють залежності стаціонарних значень середньої концентрації адсорбату $\langle x_n \rangle_{st}$ та параметра порядку $\langle(\delta x_n)^2\rangle_{st}$ на кожному n -му шарі відповідно. Результати одержано при: $\varepsilon = 4,0$, $u = 0,2$.⁴⁸

енергії взаємодії адсорбату ε відокремлені острови адсорбату формуються на перших трьох шарах (див. знімок на рис. 48, *a* при $\varepsilon = 3,5$). Тут відповідні стаціонарні значення середньої концентрації адсорбату $\langle x_n \rangle$ і $\langle (\delta x_n)^2 \rangle$ відмінні від нуля для шарів $n \leq 3$ (див. дані, наведені на рис. 48, *б, в*). При помірних значеннях енергії взаємодії адсорбату формуються багат шарові структури адсорбату (див. рис. 48, *a* при $\varepsilon = 4,0$). При цьому на верхніх шарах цієї структури реалізуються острови вакансій (отвори) всередині островів адсорбату. Останнє узгоджується зі зниженням середньої стаціонарної концентрації адсорбату та відповідної дисперсії для верхніх шарів. У разі досить сильної притягальної взаємодії дана картина проявляється більш чітко (див. знімок при $\varepsilon = 4,5$ на рис. 48, *a* та відповідні залежності $\langle x_n \rangle$ та $\langle (\delta x_n)^2 \rangle$ від номера шару на рис. 48, *б, в*).

Далі зупинимося більш детально на встановленні впливу зовнішнього електричного поля, напруженість якого визначає силу анізотропії u у переходах адатомів між сусідніми шарами, на динаміку формування поверхневих багат шарових структур та їх морфологію. Залежності стаціонарних значень концентрації адсорбату та відповідної дисперсії від сили анізотропії u , разом з ілюстраціями типових багат шарових структур, що реалізуються при різних значеннях u , представлено на рис. 49. Рисунок 49, *a* ілюструє описаний вище морфологічний перехід в структурі поверхні зі збільшенням сили зовнішнього впливу.

Так, при фіксованих α і ε в ізотропному моделі при $u = 0$ на поверхні реалізуються лабіринтоподібні структури адсорбату з островами вакансій (отворами) всередині. Зі збільшенням сили анізотропії

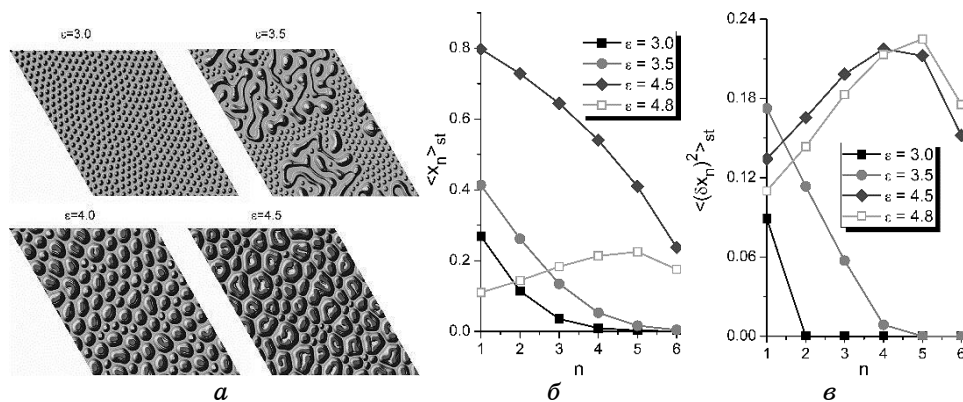


Рис. 49. Типові ілюстрації зміни стаціонарної картини морфології поверхні при різних значеннях енергії взаємодії адсорбату (*a*). Рисунок (*б*) та (*в*) ілюструють залежності стаціонарних значень середньої концентрації адсорбату $\langle x_n \rangle_{st}$ та параметра порядку $\langle (\delta x_n)^2 \rangle_{st}$ на кожному n -му шарі відповідно. Результати одержано при: $\alpha = 0,2$, $u = 0,3$.⁴⁹

u адатоми переміщуються з нижніх шарів з більшою ймовірністю, ніж у протилежному напрямку. Порівнюючи структури, одержані при різних значеннях u , можна бачити, що структури адсорбату з отворами трансформуються в змішану структуру, де сформовані острови адсорбату характеризуються наявністю отворів (див. рис. 49, *a* при $u = 0,15$). При подальшому зростанні напруженості зовнішнього поля формуються відокремлені острови адсорбату, що обумовлене додатковим перенесенням адатомів, викликаним зовнішнім впливом. У випадку формування відокремлених багатошарових структур адсорбату концентрація адсорбату на кожному шарі зменшується з ростом u , що добре видно з рис. 49, *б*. Із залежностей стаціонарних значень дисперсії $\langle(\delta x_n)^2\rangle_{st}$ від напруженості електричного поля u (див. рис. 49, *в*), видно, що на першому шарі $\langle(\delta x_1)^2\rangle_{st}$ монотонно збільшується з u , що означає утворення на цьому шарі надзвичайно щільної фази островів адсорбату (тут існує надзвичайно висока різниця між щільною фазою і газовою фазою). Стаціонарні значення дисперсій на сусідніх шарах характеризуються немонотонними залежностями від u . При збільшенні u від $u = 0$ реалізується картина, аналогічна для першого шару (див. рис. 50). Вище певного критичного значення u , пов'язаного з положенням максимуму для кожної залежності $\langle(\delta x_n)^2\rangle_{st}(u)$, розмір острову на цьому шарі зменшується через малу концентрацію адатомів на ньому, що добре прослідковується при порівнянні значень $\langle(\delta x_n)^2\rangle_{st}$ при фіксованому u .

Далі проведемо кореляційний аналіз, досліджуючи кореляційну функцію, що представляється виразом (20). Залежність розрахованого значення періоду просторових збурень R_0 , виміряного в одиницях L_D від сили анізотропії вертикальної дифузії u наведено на рис. 51 з типовими структурами у квазістаціонарному режимі при різних значеннях u . З рисунка видно, що при початковому збільшенні сили анізотропії R_0 зростає; в околі $u = u_c$ набуває максимального значення і з подальшим збільшенням сили анізотропії спадає.

Таким чином, значення $u = u_c$ характеризує точку структурного переходу в морфології поверхні: при $1 \leq u < u_c$ під час адсорбції зростаюча поверхня на великих часових інтервалах буде характеризуватися наявністю отворів в матриці адсорбату, тоді як при $u > u_c$ будуть формуватися відокремлені структури адсорбату [47]. За умови $u = u_c$ маємо картину еквівалентну до сценарію фазового розшарування з виділенням перколювальних кластерів адсорбату. На верхній панелі до рис. 51 представлено типові квазістаціонарні структури при збільшенні сили анізотропії вертикальної дифузії, які ілюструють зміну в морфології зростаючої поверхні. На вставці до рис. 51 представлено залежності кореляційної функції $C(r)$, які ілюструють осцилівну поведінку з різним значенням періоду просторових осциляцій.

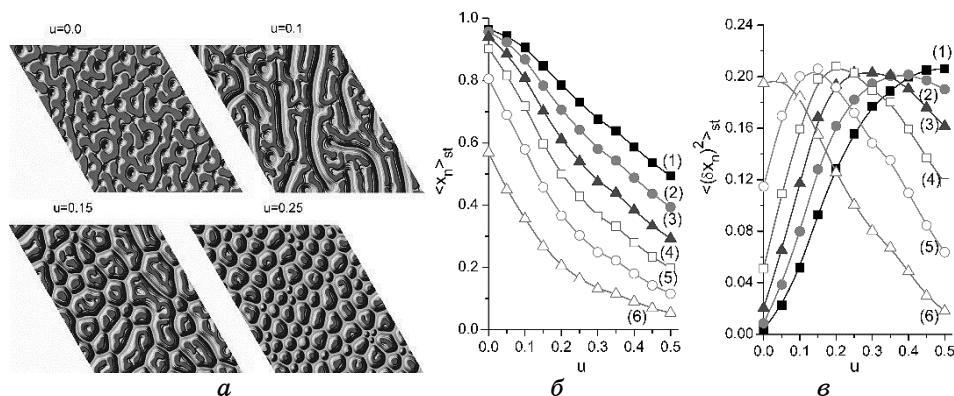


Рис. 50. Типові ілюстрації зміни стаціонарної картини морфології поверхні при різних значеннях сили анізотропії вертикальної дифузії адатомів (а). Рисунок (б) та (в) ілюструють залежності стаціонарних значень середньої концентрації адсорбату $\langle x_n \rangle_{st}$ та параметра порядку $\langle (\delta x_n)^2 \rangle_{st}$ на кожному n -му шарі відповідно. Результати одержано при: $\alpha = 0, 2, \varepsilon = 4, 0$.⁵⁰

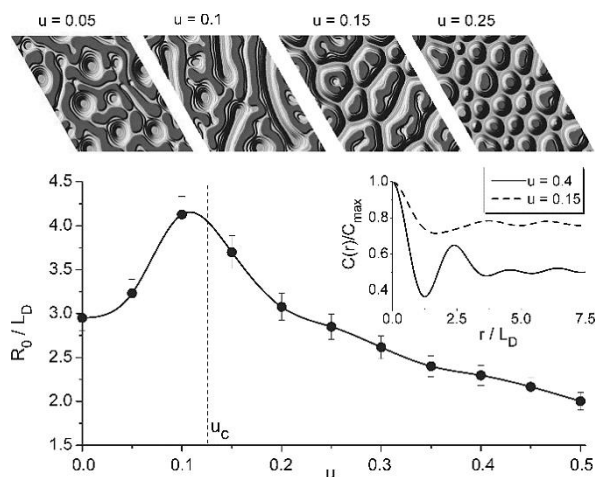


Рис. 51. Залежність середньої відстані між структурами R_0 від сили анізотропії вертикальної дифузії u . Типові структури в квазістаціонарному режимі наведені зверху при різних значеннях u . Відповідні залежності двоточкової стаціонарної кореляційної функції для систем з різною силою анізотропії вертикальної дифузії u наведено на вставці.⁵¹

6.4. Статистичні властивості процесу багат шарового росту структур

Далі сфокусуємо нашу увагу на встановленні способів контролю типом та розміром поверхневих структур на кожному шарі багатшарової системи «плазма–конденсат». Для цього проаналізуємо ево-

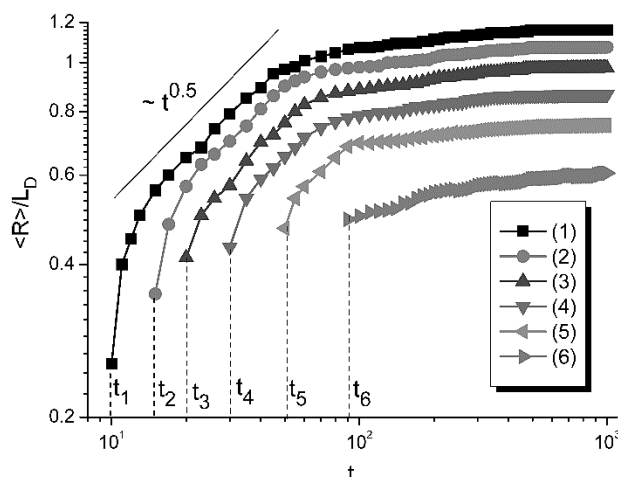


Рис. 52. Еволюція середнього лінійного розміру структур адсорбату $\langle R_n \rangle$ в одиницях дифузійної довжини L_D на кожному n -му шарі. Результати одержано при: $\varepsilon = 4,0$, $u = 0,3$ та $\alpha = 0,2$.⁵²

люцію середнього лінійного розміру островів адсорбату $\langle R_n \rangle$ на кожному шарі, що представлені на рис. 51 при фіксованих параметрах системи. Моменти часу t_1, \dots, t_6 відповідають початку формування островів на відповідному шарі. Як було показано раніше (див. [39]) ці часи визначаються двома, виконуваними одночасно, умовами, а саме: пересиченням газової фази на поточному шарі і критичним розміром острову адсорбату на попередньому шарі. На представлених залежностях $\langle R_n \rangle(t)$ можна виділити три стадії росту островів. Перша стадія пов'язана з формуванням зародків і зростанням островів (швидке зростання $\langle R_n \rangle$ з часом). Цей етап характеризується асимптотикою $\langle R_n \rangle \propto t^H$ з $H \approx 0,5$ (крім найвищого шару). На другій стадії відбувається перерозподіл адсорбату між островами (уповільнене збільшення середнього радіуса островів). Останній етап відповідає квазістаціонарному режимові без помітного збільшення середнього розміру острову на поточному шарі.

Далі розглянемо вплив анізотропії вертикальної дифузії на зміну середнього лінійного розміру структур адсорбату $\langle R \rangle$ (при $u > u_c$) на рівні половини висоти зростаючої поверхні. Еволюцію $\langle R(t) \rangle$ в одиницях дифузійної довжини L_D наведено на рис. 53 при різних значеннях u . З рисунка видно, що при невеликих значеннях сили анізотропії середній лінійний радіус структур адсорбату $\langle R \rangle$ зростає з часом навіть на великих часових інтервалах (див. криву з квадратами при $u = 0,2$), коли середня концентрація адсорбату набуває стаціонарного значення. Збільшення сили анізотропії вертикальної дифузії u приводить до стабілізації процесів росту (див. криву з

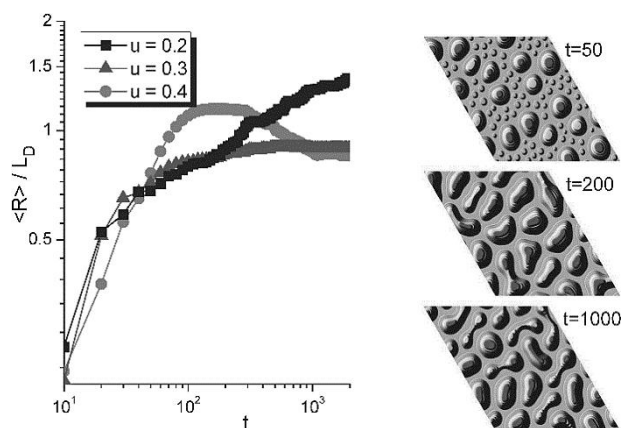


Рис. 53. Еволюція середнього лінійного розміру структур адсорбату $\langle R \rangle$ в одиницях дифузійної довжини L_D на рівні половини висоти зростаючої поверхні при різних значеннях сили анізотропії вертикальної дифузії u (зліва) та еволюція структур адсорбату при $u = 0,4$ (справа).⁵³

трикутниками при $u = 0,3$). Тут після завершення стадії росту (зростаюча залежність $\langle R \rangle$) середній лінійний розмір структур набуває стаціонарного значення на великих часових інтервалах. При високих значеннях сили анізотропії u залежність $\langle R(t) \rangle$ проявляє немонотонний характер (див. криву з кружками при $u = 0,4$): лінійний розмір структур адсорбату зростає з часом, набуває максимального значення, потім спадає до стаціонарного значення. Спадна залежність $\langle R(t) \rangle$ означає, що переважний рух адатомів з нижніх шарів на верхні при великих u приводить до формування більш компактних структур адсорбату. При цьому стаціонарне значення середнього лінійного розміру структур адсорбату зменшується зі збільшенням сили анізотропії u . На рисунку 53 справа представлено еволюцію структур адсорбату при $u = 0,4$, що відповідає немонотонній залежності середнього лінійного розміру структур від часу.

Видно, що на стадіях росту $\langle R(t) \rangle$ на поверхні реалізуються як великі багат шарові структури адсорбату, так і малі острови адсорбату на нижньому шарі (див. рис. 53 справа при $t = 50$). Протягом адсорбції ці малі острови взаємодіють між собою та з великими структурами адсорбату. Це приводить до швидкого росту середнього розміру структур адсорбату (див. рис. 53 справа при $t = 200$). При подальшій еволюції системи сильна вертикальна анізотропія приводить до зміни форми не сферичних структур адсорбату. В результаті структури адсорбату набувають гантелеподібної форми (див. рис. 53 справа при $t = 1000$), і коли ширина перемички стає меншою за критичне значення, такі структури розділяються на два відокремлені острови адсорбату. Цей процес приводить до спадної залежнос-

ті середнього лінійного розміру структур з часом.

Одержані результати уможливають встановити функції розподілу структур адсорбату за розмірами $\phi(R/\langle R \rangle)$. Відповідні результати подано на рис. 54, з якого випливає, що у фіксований момент часу на стадії росту дані розподіли є універсальними для кожного шару. На вставці на рис. 54 наведено розподіли структур адсорбату на третьому шарі в різні моменти часу на стадії росту. З одержаних даних можна зробити висновок, що розподіл $\phi(R/\langle R \rangle)$ не залежить від часу, тобто є універсальним. Перехід до квазістаціонарного режиму залежить від умов конденсації. З одержаних результатів випливає, що у квазістаціонарному режимі розмір островів на кожному шарі (крім першого) менший за дифузійну довжину: $\langle R_n \rangle < L_D$. Цей ефект пов'язаний із взаємодією атомів на кожному шарі, яке дається потенціалом притягання $u(r)$ з радіусом взаємодії $r_0 \ll L_D$.

Одержані дані щодо динаміки росту середнього розміру островів адсорбату та розподілу структур адсорбату за розмірами добре співвідносяться з модифікованою теорією Оствальда [84, 85]. У рамках цього підходу острови розглядаються як диски розміром R і висотою h , розташовані на підкладинці при температурі T . Розмір острову еволюціонує зі швидкістю $v_R = R^*(1/R_c - 1/R)$, де характерний радіус R^* визначається властивостями матеріялу. Закон збереження маси має вигляд: $R^*/R_c + A \int R^2 \phi(R, t) dR = 1$, де критичний розмір острову $R_c = \sigma \Omega / Th \zeta$ визначається у стандартний спосіб через пересичення ζ , питому поверхневу енергію σ та атомовий об'єм одного конденсованого атому Ω , A є константою (або, у загальному випадку, залежною від часу функцією).

Функція розподілу підпорядковується рівнянню неперервності виду $\partial_t \phi(R, t) = -\partial_R (v_R \phi(R, t))$ зі стандартними властивостями $\phi(R, 0) = N_0 \phi_0(R)$, $\int \phi_0(R) dR = 1$, де N_0 — початкова кількість зародків структур з їх розподілом за розмірами $\phi(R)$. Як було показано у роботі [85], динаміка росту острову на стадії Оствальдового визрівання масштабно інваріантна, і розв'язок рівняння неперервності допускає розв'язок у автотомельному режимі з $R_c(t) \sim \langle R(t) \rangle \propto t^{1/2}$ для критичного розміру острову, $N(t) \propto t^{-1}$ для кількості островів на підкладинці і універсальною функцією розподілу за розмірами $\phi(x) = A x (x - z_0)^{-3} \exp(-x/(z_0 - x))$, де $x = R/\langle R \rangle$, $z_0 = r_c/\langle R \rangle \approx 1,677$, A — параметер моделю [85]. Такі ж асимптотики були знайдені для середнього розміру острову на кожному шарі, за винятком останнього, та для розподілу островів адсорбату за розмірами (див. суцільну криву на рис. 54). Одержані результати добре узгоджуються з експериментальними спостереженнями щодо утворення наночастинок металів при конденсації з газової фази (див., наприклад, роботи [82, 83]) та з теоретичними дослідженнями [39, 47].

Той факт, що середній розмір островів адсорбату відрізняється від шару до шару (зменшується від нижніх шарів до верхніх), означає

утворення терас пірамідальних структур, середня ширина яких дається виразом $\langle L_n \rangle = \langle R_n \rangle - \langle R_{n+1} \rangle$. Залежності середнього розміру структур адсорбату та середньої ширини тераси на кожному шарі у квазістаціонарному режимі від напруженості підведеного до підкладинки електричного поля u показано на рис. 55. Із залежності $\langle R_n \rangle(u)$ (див. рис. 55, а) випливає, що зі збільшенням u розмір островів на кожному шарі стає меншим, а отже, на підкладинці реалізуються багатошарові пірамідально подібні структури із середнім розміром острова, меншим за дифузійну довжину. Середня ширина тераси змінюється немонотонним чином з ростом u для всіх шарів, крім останнього (див. рис. 55, б). Тут при малих u ширина тераси збільшується з u за рахунок малого внеску анізотропії, індукованої зовнішнім впливом.

Основні механізми, що керують ростом островів, пов'язані з термічною адсорбцією/десорбцією та квазіізотропною вертикальною дифузиею. Вище певного значення сили анізотропії u основну роль у формуванні поверхневих структур відіграє анізотропна вертикальна дифузія, індукована зовнішнім полем. При великих u значення $\langle L_n \rangle$ зменшується внаслідок руху адатомів від нижніх шарів до верхніх. Величина $\langle L_5 \rangle$ (пов'язана з островом на передостанньому шарі) набуває великих значень. З ростом u середнє значення ширини тераси $\langle L_5 \rangle$ зменшується за рахунок утворення островів на останньому шарі, викликаного анізотропною дифузиею адатомів. Цікаво відзначити, що відношення між середніми ширинами терас при малих u (до порогового значення, пов'язаного з максимумом залежності $\langle L_n \rangle(u)$) має ви-

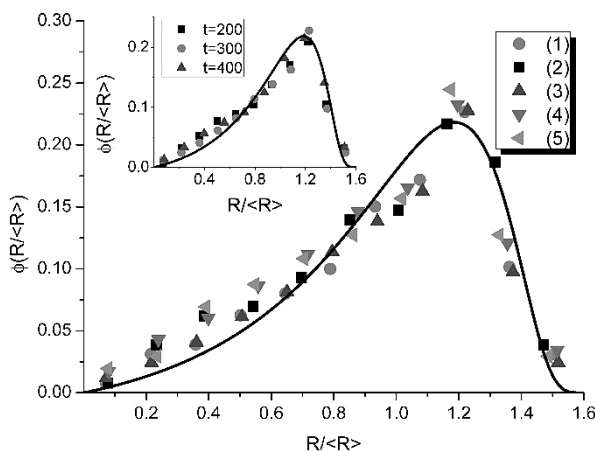


Рис. 54. Розподіл структур адсорбату за розмірами на різних шарах ($n = 1, \dots, 5$) на стадії перерозподілу адсорбату між сформованими кластерами. На вставці представлено розподіли для третього шару в різні моменти часу стадії перерозподілу адсорбату. Результати одержано при: $\varepsilon = 4,0$, $u = 0,3$ та $\alpha = 0,2$.⁵⁴

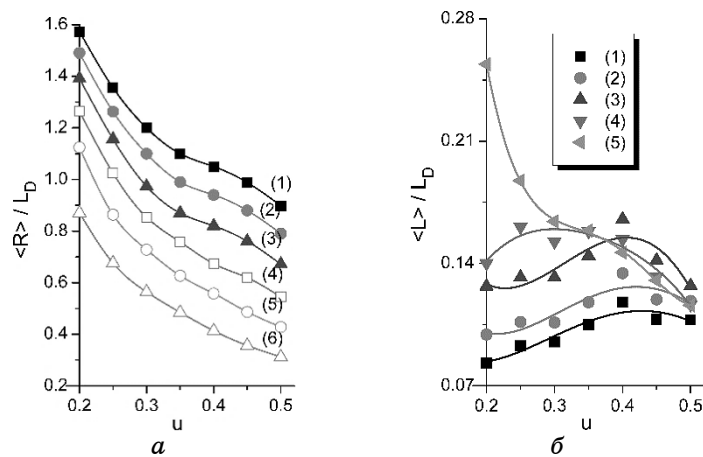


Рис. 55. Квазистаціонарні значення середнього лінійного розміру структур адсорбату $\langle R \rangle$ (а) та середньої ширини тераси пірамідальних структур $\langle L \rangle$ (б) в одиницях дифузійної довжини L_D на кожному n -му шарі при $\varepsilon = 4,0$ та $\alpha = 0,2$.⁵⁵

гляд $\langle L_n \rangle < \langle L_{n+1} \rangle$. Тут адсорбція/десорбція й ізотропна вертикальна дифузія сприяють руху адатомів до нижніх шарів. При підвищенні u (вище порогу) різниця в $\langle L_n \rangle$ зменшується, і більшість шарів характеризуються однаковою шириною тераси. Цей ефект зумовлений анізотропною дифузією адатомів між шарами.

На рисунку 56 наведено результати щодо зміни стаціонарного значення середнього розміру структур адсорбату на кожному шарі при варіюванні умов осадження. Аналізуючи одержані дані при різних значеннях тиску всередині камери (зміна параметра α), маємо, що збільшення тиску приводить до збільшення середнього розміру за рахунок ефективної адсорбції адатомів (пор. криві з квадратами та кружечками). Збільшення енергії взаємодії адсорбату ε приводить до аналогічного ефекту (пор. криві з квадратами та ромбами), проте за таких умов вирощування процеси десорбції стають менш ефективними у порівнянні з адсорбцією. Зі збільшенням напруженості зовнішнього електричного поля (пор. криві з квадратами та трикутниками) середній розмір структур стає меншим.

6.5. Перехід від багатшарового моделю до одношарового наближення

Одержані дані щодо залежності стаціонарного значення концентрації адсорбату на кожному шарі багатшарової системи при різних значеннях керувальних параметрів уможливають встановити залежність концентрації адсорбату на $(n + 1)$ -му та $(n - 1)$ -му шарах від концентрації адсорбату на n -му шарі. З цією метою, аналізуючи

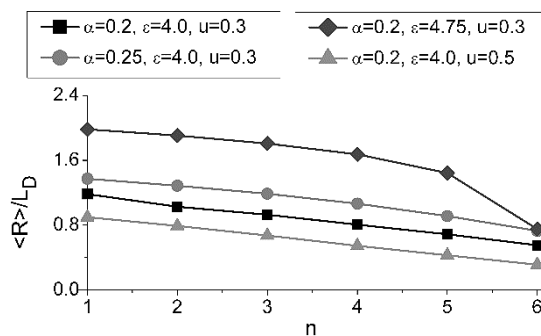


Рис. 56. Квазистаціонарні значення середнього лінійного розміру структур адсорбату $\langle R \rangle$ в одиницях дифузійної довжини L_D на кожному n -му шарі при різних значеннях параметрів системи.⁵⁶

результати $\langle x_n \rangle_{st}(u)$ (див. рис. 49, б), було розраховано залежності $x_2(x_3)$ та $x_4(x_3)$, що представлено на рис. 57 затушованими та пустими кружечками відповідно. Суцільною та штриховою кривими подано залежності $x_{n-1} = (\sqrt{x_n} + \beta / 2)^2$, $x_{n+1} = (\sqrt{x_n} - \beta / 2)^2$ при $\beta = 0, 1$.

Штрих-пунктирна пряма задає $x_{n\pm 1} = x_n$.

З одержаних результатів видно, що теоретичні залежності добре узгоджуються з числовими даними, а, отже, побудований математичний модель еволюції адсорбату на проміжному шарі з функціональною залежністю концентрації адсорбату на сусідніх шарах від концентрації на виділеному шарі, $x_{n\pm 1} = (\sqrt{x_n} \mp \beta / 2)^2$, відтворює якісну картину просторово-часової еволюції адсорбату при багатошаровій конденсації.

7. ВИСНОВКИ

У даній роботі проведено теоретичний опис і числове моделювання процесів формування стаціонарних просторових відокремлених структур на поверхнях тонких плівок при осадженні в системах «плазма–конденсат». Було побудовано узагальнений одношаровий модель для опису процесів формування пірамідальних структур при багатошаровій конденсації з урахуванням процесів адсорбції, десорбції, поверхневої та вертикальної дифузії, а також анізотропії в переходах адатомів між сусідніми шарами, з переважальними переходами від нижніх шарів до верхніх, викликаній дією підведеного до підкладки електричного поля. Розглянуто випадок періодичних і стохастичних змін сили такої анізотропії та флюктуацій поверхневого потоку адсорбату.

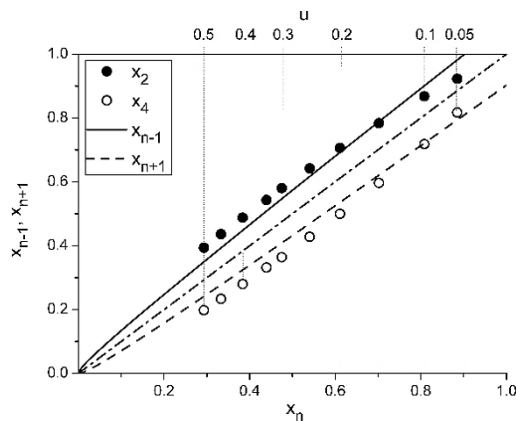


Рис. 57. Залежності стаціонарного значення концентрації адсорбату на $(n + 1)$ -му (пусті кружки) та $(n - 1)$ -му (затушовані кружки) шарах від концентрації адсорбату на n -му шарі при $\alpha = 0,2$, $\varepsilon = 4,0$ та $n = 3$ при різних значеннях сили анізотропії у переходах адатомів між шарами u (наведено на верхній осі). Суцільною та штриховою кривими подано залежності $x_{n-1} = (x_n^{1/2} + \beta/2)^2$, $x_{n+1} = (x_n^{1/2} - \beta/2)^2$ при $\beta = 0,1$. Штрих-пунктирна пряма задає $x_{n\pm 1} = x_n$.⁵⁷

Розглянуто випадок однорідної системи й одержано залежності стаціонарних значень концентрації адсорбату від основних керувальних параметрів системи, що зводяться до коефіцієнта адсорбції, енергії взаємодії адсорбату між собою та сили анізотропії вертикальної дифузії адатомів, що визначається напруженістю підведеного до підкладинки зовнішнього електричного поля в системі «плазма-конденсат». Встановлено умови реалізації переходів першого роду в досліджуваній системі й одержано фазові діаграми, що ілюструють зміну області бістабільності.

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 флюктуацій випадкової зміни сили анізотропії вертикальних переходів адатомів між шарами. Показано, що у випадку слабких флюктуацій середній час переходів зменшується з ростом амплітуди періодичних змін напруженості електричного поля й оптимізується з частотою цих періодичних осциляцій. Встановлено, що збільшення інтенсивності флюктуацій напруженості підведеного електричного поля при малих значеннях затримує динаміку цих переходів внаслідок ефектів асинхронізації періодичної та стохастичної компонент. Зростання інтенсивності флюктуацій напруженості

електричного поля при великих інтенсивностях приводить до зменшення часу переходів від стану з малою густиною до стану з високою густиною.

В рамках аналізу на стійкість досліджено просторово-розподілену систему та встановлено стійкість однорідних стаціонарних станів до неоднорідних збурень. Встановлено інтервали значень параметрів системи, коли з плином часу на підкладинці формуються відокремлені структури адсорбату. Одержано фазові діаграми, що ілюструють відповідні області значень параметрів системи. Встановлено залежності середнього періоду розташування відокремлених структур адсорбату від основних параметрів системи.

Досліджуючи просторово-розподілену детерміністичну систему за умови незмінності у часі напруженості електричного поля встановлено області зміни основних керувальних параметрів системи, за яких можливою стає реалізація стійких просторових структур. Виявлено можливість контролювання динаміки процесів структуроутворення, морфології зростаючої поверхні, типу та розміру поверхневих структур, змінюючи тиск всередині камери, температуру та напруженість підведеного до підкладинки електричного поля. Встановлено, що збільшення тиску всередині камери приводить до: а) збільшення концентрації адсорбату в системі; б) пришвидшення процесів формування відокремлених структур адсорбату; в) росту лінійного розміру структур адсорбату; г) формування видовжених структур; д) уповільнення динаміки формування відокремлених отворів у матриці адсорбату та зменшення їхнього лінійного розміру. При збільшенні напруженості електричного поля реалізується зворотня картина морфологічної та структурної перебудови поверхні з переходом від відокремлених структур отворів у матриці адсорбату через лабіринтну структуру перколювальних кластерів адсорбату до відокремлених сферичних структур адсорбату. При фіксованих значеннях тиску всередині камери та напруженості електричного поля збільшення енергії взаємодії адсорбату приводить до формування видовжених структур адсорбату разом із сферичними.

Проведено детальне дослідження впливу флюктуацій поверхневого потоку адсорбату на динаміку структурування поверхні, її морфологію та статистичні властивості. У рамках аналізу на стійкість і з використанням числового моделювання встановлено, що збільшення інтенсивності цих флюктуацій приводить до гомогенізації розподілу адсорбату в системі. Встановлено, що у випадку слабких флюктуацій збільшення їхньої інтенсивності приводить до: а) пришвидшення процесів структуроутворення, б) уповільнення динаміки росту середнього розміру структур адсорбату, в) зменшення лінійного розміру сферичних островів адсорбату. Виявлено, що дія цього шуму приводить до аномального росту середнього розміру острову з асимптотикою t^{δ} та $\delta < 1$, порівняно із чисто детерміністич-

ним 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 флюктуацій потоку адсорбату, її зростання приводить до морфологічного переходу від відокремлених структур адсорбату через лабіринтну структуру до відокремлених отворів у матриці адсорбату.

Проведено вивчення впливу флюктуацій напруженості підведеного до підкладинки електричного поля на динаміку упорядкування адсорбату на поверхні та статистичні властивості поверхневих структур. Показано, що при фіксованих значеннях середньої інтенсивності напруженості електричного поля поблизу підкладинки флюктуації індують упорядкування адсорбату на підкладинці, приводячи до утворення окремих нанорозмірних островів адсорбату. Збільшення інтенсивності флюктуацій приводить до: морфологічного перетворення поверхні з розділених островів адсорбату через перколяційну структуру адсорбату до відокремлених наноотворів всередині матриці адсорбату; пришвидшення процесів упорядкування; збільшення просторового порядку зростаючої поверхні. Сильні флюктуації стабілізують систему, приводячи до гомогенізації поля покриття. У разі кореляцій між середнім значенням напруженості електричного поля та інтенсивністю її флюктуацій при формуванні відокремлених структур адсорбату збільшення відношення інтенсивності шуму до середнього значення напруженості електричного поля приводить до: пришвидшення процесів структуроутворення; забезпечує формування добре впорядкованих структур; приводить до аномальної динаміки середнього розміру островів адсорбату.

Побудовано узагальнений модель формування поверхневих структур у багат шаровій системі «плазма-конденсат». Показано, що поєднання трьох основних параметрів, пов'язаних з тиском газу в камері, енергією взаємодії адсорбату та напруженістю зовнішнього поля, сприяє формуванню на кожному шарі багат шарової системи поверхневих структур із заданою морфологією та розмірами. Показано, що на стадії росту динаміка системи добре описується модифікованою теорією Оствальдового визрівання, а розподіл островів за розмірами є універсальним для всіх шарів на цій стадії та добре узгоджується з теоретичним передбаченням.

Проводячи оцінку результатів щодо лінійного розміру поверхневих структур, показано, що відокремлені кластери адсорбату у квазістаціонарному режимі характеризуються розмірами від 60 до 90 нм, тоді як відокремлені отвори всередині матриці адсорбату мають розміри від 30 до 90 нм (на приблизно половині висоти зростаючої поверхні). Одержані дані добре узгоджуються з експериментально спостережуваними величинами щодо розмірів поверхневих струк-

тур при конденсації.

Одержані результати можуть бути використані для прогнозування динаміки процесів конденсації адсорбату в системах «плазма–конденсат». Вони уможливають визначити режими контролю морфології поверхні, типу та середнього розміру поверхневих структур і можуть використовуватися при корегуванні технологічних умов вирощування наноструктурованих тонких плівок із наперед заданими статистичними властивостями поверхневих структур.

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА–REFERENCES

1. M. Ohring, *Materials Science of Thin Films* (New York: Academic Press: 2001).
2. E. Hirota, *Giant Magneto-Resistance Devices* (Berlin: Springer: 2002).
3. R. J. Warburton, C. Schaflein, D. Haft et al., *Nature*, **405**: 926 (2000); <https://doi.org/10.1038/35016030>
4. A. Shah, P. Torres, R. Tscharnner et al., *Science*, **285**: 692 (1999). <https://doi.org/10.1126/science.285.5428.692>
5. Li-Dong Zhao, Shih-Han Lo, Yongsheng Zhang et al., *Nature*, **508**: 373 (2014). <https://doi.org/10.1038/nature13184>
6. S. A. Campbell, *The Science and Engineering of Microelectronic Fabrication* (New York: Oxford University Press: 1996).
7. J. Masalski, J. Gluszek, J. Zabrzski et al., *Thin Solid Films*, **349**: 186 (1999). [https://doi.org/10.1016/S0040-6090\(99\)00230-8](https://doi.org/10.1016/S0040-6090(99)00230-8)
8. P. Vitanov, A. Harizanova, T. Ivanova, and T. Dimitrova, *Thin Solid Films*, **517**: 6327 (2009). <https://doi.org/10.1016/j.tsf.2009.02.085>
9. A. K. Chin, G. Zydzik, S. Singh et al., *J. Vac. Sci. Technol. B*, **1**: 72 (1983). <https://doi.org/10.1116/1.582507>
10. K. Mumtaz, J. Echigoya and H. Enoki et al., *J. Mater. Sci.*, **31**: 5247 (1996). [http://dx.doi.org/10.1016/0925-8388\(94\)91114-2](http://dx.doi.org/10.1016/0925-8388(94)91114-2)
11. J. Gottmann, A. Husmann, T. Klotzbiicher, and E. W. Kreutz, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.*, **101**: 1 (1998). <https://doi.org/10.1051/epjap/2013120530>
12. S. Carmona-Tellez, J. Guzman-Mendoza, M. Aguilar-Frutis et al., *J. Appl. Phys.*, **103**: 34105 (2008). <https://doi.org/10.1063/1.2838467>
13. M. Aguilar-Frutis, M. Garcia, C. Falcony et al., *Thin Solid Films*, **389**: 200 (2001). [https://doi.org/10.1016/S0040-6090\(01\)00854-9](https://doi.org/10.1016/S0040-6090(01)00854-9)
14. B. P. Dhonge, T. Mathews, S. T. Sundari et al., *Appl. Surf. Sci.*, **258**: 1091 (2011). <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2011.09.040>
15. J. C. Ortiz and A. Alonso, *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, **13**: 7 (2002). <https://doi.org/10.1007/s10853-006-0004-0>
16. Y. Wu and K. L. Choy, *Surf. Coatings Technol.*, **180–181**: 436 (2004). <https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2003.10.078>
17. V. I. Perekrestov, A. I. Olemskoi, Yu. O. Kosminska, and A. A. Mokrenko, *Physics Letters A*, **373**: 3386 (2009). <https://doi.org/10.1016/j.physleta.2009.07.032>
18. Y. A. Kosminska, A. A. Mokrenko, and V. I. Perekrestov, *Tech. Phys. Lett.*, **37**: 538 (2011). <https://doi.org/10.1134/S1063785011060083>
19. A. G. Zhiglinskiy and V. V. Kuchinskiy, *Mass Transfer at an Interaction of Plasma with Surface* (Moscow: Energoizdat: 1991).

20. K. Pohl, M. C. Bartelt, J. de la Figuera et al., *Nature*, **397**: 238 (1999). <https://doi.org/10.1038/16667>
21. Y. W. Mo, B. S. Swartzentruber, R. Kariotis et al., *Phys. Rev. Lett.*, **63**: 2393 (1989). <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.63.2393>
22. G. E. Cirlin, V. A. Egorov, L. V. Sokolov, and P. Werner, *Semiconductors*, **36**: 1294 (2002). <https://doi.org/10.1134/1.1521233>
23. J. P. Bucher, E. Hahn, P. Fernandez et al., *Europhys. Lett.*, **27**: 473 (1994). <https://doi.org/10.1209/0295-5075/27/6/011>
24. V. Gorodetskii, J. Lauterbach, H. A. Rotermund et al., *Nature*, **370**: 276 (1994). <https://doi.org/10.1038/370276a0>
25. K. Kern, H. Niehus, A. Schatz et al., *Phys. Rev. Lett.*, **67**: 855 (1991). <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.67.855>
26. T. M. Parker, L. K. Wilson, N. G. Condon, and F. M. Leibsle, *Phys. Rev. B*, **56**: 6458 (1997). <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.56.6458>
27. H. Brune, M. Giovannini, K. Bromann, and K. Kern, *Nature*, **394**: 451 (1998). <https://doi.org/10.1038/28804>
28. P. G. Clark and C. M. Friend, *J. Chem. Phys.*, **111**: 6991 (1999). <https://doi.org/10.1063/1.479992>
29. P. Marchand, I. A. Hassan, I. P. Parkin, and C. J. Carmalt, *Dalton Trans.*, **42**: 9406 (2013). [doi:10.1039/c3dt50607j](https://doi.org/10.1039/c3dt50607j)
30. M. Hildebrand, A. S. Mikhailov, and G. Ertl, *Phys. Rev. E*, **58**: 5483 (1998). <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.58.5483>
31. M. Hildebrand and A. S. Mikhailov, *J. Phys. Chem.*, **100**: 19089 (1996). <https://doi.org/10.1021/jp961668w>
32. D. Batogkh, M. Hildebrand, F. Krischer, and A. Mikhailov, *Phys. Rep.*, **288**: 435 (1997). [https://doi.org/10.1016/S0370-1573\(97\)00036-7](https://doi.org/10.1016/S0370-1573(97)00036-7)
33. M. Hildebrand, A. S. Mikhailov, and G. Ertl, *Phys. Rev. Lett.*, **81**: 2602 (1998). <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.81.2602>
34. A. Mikhailov and G. Ertl, *Chem. Phys. Lett.*, **238**: 104 (1994). [https://doi.org/10.1016/0009-2614\(95\)00386-X](https://doi.org/10.1016/0009-2614(95)00386-X)
35. V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, S. V. Kokhan et al., *Physica Scripta*, **86**: 055401 (2012). <https://doi.org/10.1088/0031-8949/86/05/055401>
36. V. O. Kharchenko and D. O. Kharchenko, *Phys. Rev. E*, **86**: 041143 (2012). <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.86.041143>
37. V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, and A. V. Dvornichenko, *Surface Science*, **630**: 158 (2014). <https://doi.org/10.1016/j.susc.2014.08.008>
38. S. B. Casal, H. S. Wio, and S. Mangioni, *Physica A*, **311**: 443 (2002). [https://doi.org/10.1016/S0378-4371\(02\)00828-2](https://doi.org/10.1016/S0378-4371(02)00828-2)
39. V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, *Surface Science*, **637–638**: 90 (2015). <https://doi.org/10.1016/j.susc.2015.03.025>
40. D. Walgraef, *Physica E*, **18**: 393 (2003). [https://doi.org/10.1016/S1386-9477\(01\)00492-1](https://doi.org/10.1016/S1386-9477(01)00492-1)
41. D. Walgraef, *Int. J. Quantum Chem.*, **98**: 248 (2004). <https://doi.org/10.1002/qua.10877>
42. L. Benning and G. Waychunas, *Nucleation, Growth, and Aggregation of Mineral Phases: Mechanisms and Kinetic Controls. Kinetics of Water–Rock Interaction* (Eds. S. Brantley, J. Kubicki, and A. White) (New York: Springer: 2008).
43. R. Ferrando, J. Jellinek, and R. L. Johnston, *Chem. Rev.*, **108**: 845 (2008). <https://doi.org/10.1021/cr040090g>

44. J. Jortner, *Z. Phys. D: At. Mol. Clusters*, **24**: 247 (1992).
<https://doi.org/10.1007/BF01425749>
45. R. G. Chaudhuri and S. Paria, *Chem. Rev.*, **112**: 2373 (2012).
<https://doi.org/10.1021/cr100449n>
46. R. L. Johnston, *Philos. Trans. R. Soc. London. Ser. A*, **356**: 211 (1998).
<https://doi.org/10.1098/rsta.1998.0158>
47. V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, and V. V. Yanovsky, *Nanoscale Research Letters*, **12**: 337 (2017). <https://doi.org/10.1186/s11671-017-2096-7>
48. M. C. Cross and P. C. Hohenberg, *Rev. Mod. Phys.*, **65**: 851 (1993).
<https://doi.org/10.1103/RevModPhys.65.851>
49. V. I. Perekrestov, Yu. O. Kosminska, and A. S. Korniyushchenko et al., *Physica B*, **411**: 140 (2013). <https://doi.org/10.1016/j.physb.2012.11.036>
50. D. Leonhardt and S. M. Han, *Surf. Sci.*, **603**: 2624 (2009).
<https://doi.org/10.1016/j.susc.2009.06.015>
51. R. Gomer, *Rep. Prog. Phys.*, **53**: 917 (1990). <https://doi.org/10.1088/0034-4885/53/7/002>
52. J. A. Sierra and H. S. Wio, *Cent. Eur. J. Phys.*, **10**: 625 (2012).
DOI: [10.2478/s11534-012-0021-3](https://doi.org/10.2478/s11534-012-0021-3)
53. M. C. Gimenez, *Eur. Phys. J. B*, **89**: 83 (2016).
<https://doi.org/10.1140/epjb/e2016-60965-1>
54. H. S. Wio, *Phys. Rev. E*, **55**: R3075 (1996).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevE.54.R3075>
55. F. Castelpoggi and H. S. Wio, *Europhysics Letters*, **38**: 91 (1997).
<https://doi.org/10.1209/epl/i1997-00206-0>
56. P. Jung and G. Mayer-Kress, *Phys. Rev. Lett.*, **74**: 2130 (1995).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.74.2130>
57. J. Wang, S. Kadar, P. Jung, and K. Showalter, *Phys. Rev. Lett.*, **82**: 855 (1999).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.82.855>
58. Z. Hou and H. Xin, *Phys. Rev. Lett.*, **89**: 280601 (2002).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.89.280601>
59. H. Hempel, L. Schimansky-Geier, and J. Garcia-Ojalvo, *Phys. Rev. Lett.*, **82**: 3713 (1999). <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.82.3713>
60. T. Biancalani, L. Dyson, and A. J. McKane, *Phys. Rev. Lett.*, **112**: 038101 (2014). <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.112.038101>
61. T. Weiss, A. Kronwald, and F. Marquardt, *New J. Phys.* **18**: 1 (2015).
<https://doi.org/10.1088/1367-2630/18/1/013043>
62. D. O. Kharchenko, V. O. Kharchenko, and I. O. Lysenko, *Physica Scripta*, **83**: 045802 (2011). <https://doi.org/10.1088/0031-8949/83/04/045802>
63. W. Horsthemke and R. Lefever, *Noise-Induced Transitions* (Berlin: Springer-Verlag: 1984).
64. J. Garcia-Ojalvo and J. M. Sancho, *Noise in Spatially Extended System* (New York: Springer-Verlag: 1999).
65. C. Van der Broeck, *Phys. Rev. Lett.*, **73**: 3395 (1994).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.73.3395>
66. C. Van der Broeck et al., *Phys. Rev. E*, **55**: 4084 (1997).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevE.55.4084>
67. J. Garcia-Ojalvo, A. Hernandez-Machado, and J. M. Sancho, *Phys. Rev. Lett.*, **71**: 1542 (1993). <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.71.1542>
68. A. Becker and L. Kramer, *Phys. Rev. Lett.*, **73**: 955 (1994).

- <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.73.955>
69. J. M. R. Parrondo, C. Van den Broeck, J. Buceta, and F. J. de la Rubia, *Physica A*, **224**: 153 (1996). [https://doi.org/10.1016/0378-4371\(95\)00350-9](https://doi.org/10.1016/0378-4371(95)00350-9)
 70. A.A. Zaikin and L. Schimansky-Geier, *Phys. Rev. E*, **58**: 4355 (1998). <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.58.4355>
 71. N. G. Van Kampen, *Stochastic Processes in Physics and Chemistry* (Amsterdam: North Holland: 1992).
 72. D. Walgraef, *Spatio-Temporal Pattern Formation* (New York: Springer-Verlag: 1997).
 73. V. O. Kharchenko, A. V. Dvornichenko, and V. N. Borysiuk, *Eur. Phys. J. B*, **91**: 93 (2018). <https://doi.org/10.1140/epjb/e2018-80730-8>
 74. J. Swift and P. C. Hohenberg, *Phys. Rev. A*, **15**: 319 (1977). <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.15.319>
 75. J. M. Sancho, M. San Miguel, S. L. Katz, and J. D. Gunton, *Phys. Rev. A*, **26**: 1589 (1982). <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.26.1589>
 76. G. E. P. Box and M. E. Muller, *Ann. Math. Stat.*, **29**: 610 (1958). <https://doi.org/10.1214/aoms/1177706645>
 77. V. O. Kharchenko and A. V. Dvornichenko, *Eur. Phys. J. B*, **92**: 57 (2019). <https://doi.org/10.1140/epjb/e2019-90588-9>
 78. Y. Lei, A. Uhl, C. Becker et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **12**: 1264 (2010). <https://doi.org/10.1039/B914323H>
 79. X. Lai, T. P. St. Clair, and D. W. Goodman, *Faraday Discuss.*, **114**: 279 (1999). <https://doi.org/10.1039/A902795E>
 80. L. Mangolini, *Journal of Physics D*, **50**: 373003 (2017). <https://doi.org/10.1088/1361-6463/aa812e>
 81. K. I. Hunter, J. T. Held, K. A. Mkhoyan, and U. R. Kortshagen, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **9**: 8263 (2017). <https://doi.org/10.1021/acsami.6b16170>
 82. V. I. Perekrestov, Yu. O. Kosminska, A. A. Mokrenko et al., *Vacuum*, **86**: 111 (2011). <https://doi.org/10.1016/j.vacuum.2011.05.003>
 83. A. S. Korniyushchenko, V. V. Natalich, and V. I. Perekrestov, *Journal of Crystal Growth*, **442**: 68 (2016). <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2016.02.033>
 84. S. A. Kukushkin and A. V. Osipov, *Physics Uspekhi*, **41**: 983 (1998). <https://doi.org/10.1070/PU1998v041n10ABEH000461>
 85. S. A. Kukushkin and A. V. Osipov, *JETP*, **86**: 1201 (1998). <https://doi.org/10.1134/1.558591>

¹Sumy State University,
2, Rimsky-Korsakov Str.,
UA-40007 Sumy, Ukraine

²Institute of Applied Physics, N.A.S. of Ukraine,
58, Petropavlivska Str.,
UA-40000 Sumy, Ukraine

¹ Fig. 1. Schematic presentation of the multilayer adsorbate structures and main processes, realized during condensation.

² Fig. 2. Dependences of the minimal value of the anisotropy strength u_{\min} on the terrace width of the multilayer adsorbate structures β : domain I defines values of the system parameters, when the adsorbate concentration on the current layer does not exceed the maximal value x_{\max} . The inset shows dependences $u_{\min}(\alpha)$ at $\beta = 0.1$.

³ Fig. 3. Dependence of the stationary adsorbate concentration on the layer x_{st} on the adsorption coefficient α at different values of the strength of the anisotropy in transitions of adatoms between layers u and interaction energy of adsorbate ε at $\beta = 0.1$.

⁴ Fig. 4. Dependence of the stationary adsorbate concentration on the layer x_{st} on the strength of the anisotropy in transitions of adatoms between layers u at different values of the adsorption coefficient α at fixed $\varepsilon = 4.0$ and $\beta = 0.1$.

⁵ Fig. 5. Phase diagram $\alpha(u)$ illustrating domain of the system bistability at $\varepsilon = 3.5$ and $\beta = 0.1$. In the inset, the diagram $\alpha(u)$ is shown at: $\varepsilon = 4.0$ and $\beta = 0.1$ (solid curves); $\varepsilon = 3.0$ and $\beta = 0.1$ (dash-dot curves); $\varepsilon = 3.0$ and $\beta = 0.15$ (dash curves).

⁶ Fig. 6. Effective potential $V(x)$ at $\varepsilon = 3.5$, $\beta = 0.1$ and different values of α and u .

⁷ Fig. 7. Phase diagram of the homogeneous system at $\varepsilon = 3.5$ and different values of the anisotropy strength u . In the inset, the bifurcation diagram $x_{st}(\sigma^2)$ is shown at $u = 1.0$ and $\alpha = 0.1$.

⁸ Fig. 8. Phase diagram of the plasma-condensate system, described by the equation $\partial_t x = f(x)$: I—domain of the monostability; II—domain of the bistability.

⁹ Fig. 9. Evolution of the adsorbate concentration (single realization is presented by the grey colour) and the mean adsorbate concentration averaged over 10^4 realizations (black curve). The inset shows the temporal dependence of the dispersion. Results were obtained at $A = 0.06$, $\omega = 10^{-3}$ and $\sigma^2 = 0.05$.

¹⁰ Fig. 10. Dependences of the mean transition time mpt from the diluted phase towards the dense phase at $\sigma^2 = 10^{-5}$ and a) amplitude of the periodical driving A and different values of the frequency of oscillations ω ; б) frequency ω at different values of the amplitude A .

¹¹ Fig. 11. Dependences of the mean transition time mpt from the diluted phase towards the dense phase on the noise intensity σ^2 at: a) $A = 0.06$ and different values of the frequency of oscillations ω ; б) $\omega = 0.01$ and different values of the amplitude A of the periodic driving.

¹² Fig. 12. Stability diagram of the stationary homogeneous state to inhomogeneous perturbations: in the domain I, stable surface structures will be formed; in the domain II, adsorbate will cover the whole layer homogeneously.

¹³ Fig. 13. Dependences of the stability exponent on the wavenumber: a) in the domain II in the diagram Fig. 12; б) in the domain I in the diagram Fig. 12.

¹⁴ Fig. 14. Stability diagram at $\alpha = 0.2$. In the domain I, stable surface structures will be formed; in the domain II, adsorbate will cover the whole layer homogeneously.

¹⁵ Fig. 15. Dependences of the wavenumbers κ_1 , κ_2 , which define the limit values of the interval of positive values of the stability exponent λ , and κ_0 , that determines the mean period of the spatial perturbations (separated surface structures) on a) anisotropy strength of the vertical diffusion u ; б) adsorption coefficient α ; в) interaction energy of adsorbate ε .

¹⁶ Fig. 16. Stability diagrams: in the domain I, separated surface structures are realized; in the domain II, adsorbate will homogeneously cover whole layer.

¹⁷ Fig. 17. Dependences of the stability exponent λ on the wavenumber κ at different values of the noise intensity Σ and $\varepsilon = 5$, $u = 1$, $\alpha = 0.1$.

¹⁸ Fig. 18. Dependences of the wavenumbers κ_1 , κ_0 , κ_2 on the noise intensity Σ at: $\varepsilon = 5$, $u = 1$, $\alpha = 0.1$.

¹⁹ Fig. 19. Stability diagram (left panel) and the stability exponent $\lambda(\kappa)$ (right panel) in different regions of the stability diagram.

²⁰ Fig. 20. Dependence of the stability exponent λ , calculated for the most unstable mode κ_m at $\alpha = 0.2$ and $\varepsilon = 3.2$.

²¹ Fig. 21. Snapshots of the system evolution at $\alpha = 0.15$, $\varepsilon = 3.2$ and: a) $u = 0.4$; б) $u = 0.6$.

²² Fig. 22. Evolution of the a) mean adsorbate concentration and б) dispersion of the concentration field at different values of the system parameters.

²³ Fig. 23. Dependences of the time instant t_c , when the processes of pattern formation start to realize, at: a) $\varepsilon = 3.3$, $u = 0.6$; б) $\varepsilon = 3.2$, $\alpha = 0.15$; в) $\alpha = 0.15$, $u = 0.6$.

²⁴ Fig. 24. Dependences of the stationary values of the adsorbate concentration $\langle x \rangle_{st}$ and the order parameter $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$ at: a) $\varepsilon = 3.3$, $u = 0.6$; б) $\varepsilon = 3.2$, $\alpha = 0.15$; в) $\alpha = 0.15$, $u = 0.6$.

²⁵ Fig. 25. Typical snapshot of the surface morphology I the quasi-stationary limit, obtained at: a) $\varepsilon = 3.3$, $u = 0.6$; б) $\varepsilon = 3.2$, $\alpha = 0.15$; в) $\alpha = 0.15$, $u = 0.6$.

²⁶ Fig. 26. Evolution of the mean linear size of adsorbate structures or holes (R), averaged over all structures, at different values of the control parameters.

²⁷ Fig. 27. Dependences of the mean linear size of adsorbate structures (filled circles) $\langle R_a \rangle$ and holes (empty circles) $\langle R_v \rangle$ and the number of adsorbate structures (filled squares) N_a and holes (empty squares) N_v at: a) $\varepsilon = 3.3$, $u = 0.6$; б) $\varepsilon = 3.2$, $\alpha = 0.15$; в) $\alpha = 0.15$, $u = 0.6$.

²⁸ Fig. 28. Snapshots of the system evolution at (a) $\Sigma = 0.05$ and (б) $\Sigma = 0.115$.

- ²⁹ **Fig. 29.** (a) Evolution of the mean adsorbate concentration $\langle x \rangle$ and the order parameter $\langle (\delta x)^2 \rangle$ at: 1) $\Sigma = 0$, 2) $\Sigma = 0.01$, 3) $\Sigma = 0.1$. In the inset the dependence of the time instant t_1 , when the patterning starts, on the noise intensity Σ is shown. (b) Dependences of the mean stationary values of the adsorbate concentration $\langle x_{st} \rangle$ and the order parameter $\langle (\delta x_{st})^2 \rangle$ on the noise intensity Σ .
- ³⁰ **Fig. 30.** (a) Dependence of the mean distance between separated structures $\langle R_0 \rangle$ on the fluctuations intensity of the adsorbate flux Σ . (b) Quasi-stationary snapshots at different values of the noise intensity Σ .
- ³¹ **Fig. 31.** Evolution of the mean linear size $\langle R \rangle$ of adsorbate structures (a) and holes (b) at different values of the noise intensity. Insets show the Σ -dependent growth index δ .
- ³² **Fig. 32.** Distributions of adsorbate structures and holes over sizes $R/\langle R \rangle$ at the growth stage at different time instants at (a) $\Sigma = 0.01$ and (b) $\Sigma = 0.115$, respectively.
- ³³ **Fig. 33.** Dependences of (a) the mean linear size of adsorbate islands and holes and (b) the number of separated structures on the noise intensity Σ .
- ³⁴ **Fig. 34.** Distributions of structures over sizes $R/\langle R \rangle$ in quasi-stationary regime at different values of the noise intensity Σ .
- ³⁵ **Fig. 35.** Evolution of the surface morphology (from the left to the right) at $\alpha = 0.2$, $\varepsilon = 3.5$, $u = 1.0$ and: (a) $\sigma^2 = 0.5$; (b) $\sigma^2 = 2.5$.
- ³⁶ **Fig. 36.** Evolution of the mean adsorbate concentration $\langle x \rangle$ and the order parameter $\langle (\delta x)^2 \rangle$ at $\alpha = 0.2$, $\varepsilon = 3.5$, $u = 1.0$ and different values of the fluctuation intensity of the electrical field strength σ^2 .
- ³⁷ **Fig. 37.** Dependences of the stationary values of the mean adsorbate concentration $\langle x \rangle_{st}$ and the order parameter $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$ on the noise intensity σ^2 at $\alpha = 0.2$, $u = 1.0$ and $\varepsilon = 3.5$. In the top, the snapshots of the quasi-stationary distribution of adsorbate are shown at different values of the noise intensity.
- ³⁸ **Fig. 38.** Dependences of the stationary values of the mean adsorbate concentration $\langle x \rangle_{st}$ and the order parameter $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$ on the noise intensity σ^2 at $\alpha = 0.2$, $u = 1.0$ and $\varepsilon = 3.2$. In the top, the snapshots of the quasi-stationary distribution of adsorbate are shown at different values of the noise intensity.
- ³⁹ **Fig. 39.** Dependences of the period of spatial perturbations R_0 (a) and the correlation radius R_c (b) on the noise intensity σ^2 at $\alpha = 0.2$, $u = 1.0$, $\varepsilon = 3.5$.
- ⁴⁰ **Fig. 40.** Typical snapshots of the stationary distribution of adsorbate at different values of the noise intensity σ^2 at $\alpha = 0.2$, $u = 1.0$, $\varepsilon = 3.5$.
- ⁴¹ **Fig. 41.** Dependences of the mean area of surface structures (a) and their amount (b) on the noise intensity σ^2 at: $\alpha = 0.2$, $u = 1.0$, $\varepsilon = 3.5$.
- ⁴² **Fig. 42.** Typical snapshots of the surface morphology at different values of the ratio σ^2/u (a). Dependences of (b) the incubation time t_c and (c) stationary value of the order parameter $\langle (\delta x)^2 \rangle_{st}$ on the ratio σ^2/u .
- ⁴³ **Fig. 43.** Evolution of the mean linear size of adsorbate islands $\langle R \rangle$ in units of diffusion length, calculated after the incubation period t_c at different values of the ratio σ^2/u . In the inset, the dependence of the growth exponent δ on σ^2/u is shown.
- ⁴⁴ **Fig. 44.** Distributions of adsorbate structures over sizes in quasi-stationary regime at different values of the ratio σ^2/u (a) and dependence of the mean stationary value of the linear size of adsorbate structures $\langle R \rangle_{st}$ on σ^2/u .
- ⁴⁵ **Fig. 45.** Typical snapshots of the surface structures at $L_0 = 256$, $\beta = 0.1$, $\alpha = 0.15$, $\varepsilon = 3.2$, $\sigma^2 = 0$, $\Sigma = 0$ and: (a) $u = 0.4$, (b) $u = 0.5$ and (c) $u = 0.6$. The top row—two-dimensional structures on the n -th layer of multilayer system; bottom row—constructed multilayer structures in the system with the total amount of N layers.
- ⁴⁶ **Fig. 46.** Typical illustration of the growth dynamics of multilayer surface structures at condensation at $\alpha = 0.2$, $\varepsilon = 4.0$.
- ⁴⁷ **Fig. 47.** Temporal dependences of the mean adsorbate concentration $\langle x_n \rangle$ (a) and dispersion of the concentration field $\langle (\delta x_n)^2 \rangle$ (b) on the each n -th layer of the multilayer system at $\alpha = 0.2$, $\varepsilon = 4.0$, $u = 0.3$.
- ⁴⁸ **Fig. 48.** Typical illustrations of the stationary surface morphology change at different values of the adsorption coefficient (a). Figures (b) and (c) illustrate dependences of the stationary values of the mean adsorbate concentration $\langle x_n \rangle_{st}$ and the order parameter $\langle (\delta x_n)^2 \rangle_{st}$ on the each n -th layer, respectively. Results were obtained at: $\varepsilon = 4.0$, $u = 0.2$.

⁴⁹ **Fig. 49.** Typical illustrations of the stationary surface morphology change at different values of the interaction energy (*a*). Figures (*b*) and (*c*) illustrate dependences of the stationary values of the mean adsorbate concentration $\langle x_n \rangle_{st}$ and the order parameter $\langle (\delta x_n)^2 \rangle_{st}$ on the each *n*-th layer, respectively. Results were obtained at: $\alpha = 0.2$, $u = 0.3$.

⁵⁰ **Fig. 50.** Typical illustrations of the stationary surface morphology change at different values of the anisotropy strength in the vertical diffusion of adatoms (*a*). Figures (*b*) and (*c*) illustrate dependences of the stationary values of the mean adsorbate concentration $\langle x_n \rangle_{st}$ and the order parameter $\langle (\delta x_n)^2 \rangle_{st}$ on the each *n*-th layer, respectively. Results were obtained at: $\alpha = 0.2$, $\varepsilon = 4.0$.

⁵¹ **Fig. 51.** Dependence of the mean distance between structures R_0 on the strength of the anisotropy of vertical diffusion *u*. Typical quasi-stationary snapshots are shown in the top at different values of *u*. The corresponding dependences of the two-point stationary correlation function for the systems with different anisotropy strength in the vertical diffusion *u* are shown in the inset.

⁵² **Fig. 52.** Evolution of the mean linear size of adsorbate structures $\langle R_n \rangle$ in units of diffusion length L_D on the each *n*-th layer. Results were obtained at: $\varepsilon = 4.0$, $u = 0.3$ та $\alpha = 0.2$.

⁵³ **Fig. 53.** Evolution of the mean linear size of the adsorbate structures $\langle R \rangle$ in units of diffusion length L_D on the level of the half-height of the growing surface at different values of the anisotropy strength of the vertical diffusion *u* (in the left) and evolution of the adsorbate structures at $u = 0.4$ (in the right).

⁵⁴ **Fig. 54.** Distribution of adsorbate structures over sizes on different layers ($n = 1, \dots, 5$) at the stage of redistribution of adsorbate between formed clusters. Inset shows distributions for the third layer at different time instants at the same stage. Results were obtained at: $\varepsilon = 4.0$, $u = 0.3$ and $\alpha = 0.2$.

⁵⁵ **Fig. 55.** Quasi-stationary values of the mean linear size of adsorbate structures $\langle R \rangle$ (*a*) and mean value of the terrace width of pyramidal structures $\langle L \rangle$ (*b*) in units of diffusion length L_D on each *n*-th layer at $\varepsilon = 4.0$ and $\alpha = 0.2$.

⁵⁶ **Fig. 56.** Quasi-stationary values of the mean linear size of adsorbate structures $\langle R \rangle$ in units of diffusion length L_D on each *n*-th layer at different values of the system parameters.

⁵⁷ **Fig. 57.** Dependences of the stationary value of adsorbate concentration on the (*n* + 1)-th (empty circles) and (*n* - 1)-th (filled circles) layers on the adsorbate concentration on the *n*-th layer at $\alpha = 0.2$, $\varepsilon = 4.0$ and $n = 3$ at different values of the anisotropy strength in the transference of adatoms between neighbour layers *u* (shown on the top axes). Solid and dash curves correspond to the dependences $x_{n-1} = (x_n^{1/2} + \beta/2)^2$, $x_{n+1} = (x_n^{1/2} - \beta/2)^2$ at $\beta = 0.1$. Dash-dot curve relates to the condition $x_{n+1} = x_n$.