

УДК 532.62:621.891

КП

№ держреєстрації 0117U003927

Інв. №

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ

Сумський державний університет (СумДУ)

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

ЗАТВЕРДЖУЮ

Проректор з наукової роботи

д-р фіз.-мат. наук, проф.

\_\_\_\_\_ А.М. Чорноус

ЗВІТ

ПРО НАУКОВО-ДОСЛІДНУ РОБОТУ

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

**ВСТАНОВЛЕННЯ УМОВ ФОРМУВАННЯ ВІДОКРЕМЛЕНИХ  
СТРУКТУР АДСОРБАТУ В СИСТЕМІ ПЛАЗМА-КОНДЕНСАТ  
(проміжний)**

Начальник НДЧ

канд. фіз.-мат. наук, с.н.с

Керівний НДР

канд. фіз.-мат. наук

Д.І.Курбатов

А.В.Дворниченко

2017

Рукопис закінчено 22 грудня 2017 р.

Результати цієї роботи розглянуто на засіданні наукової ради СумДУ, протокол  
від 29.11.2017 № 2

## СПИСОК АВТОРІВ

Керівник НДР канд. фіз.-мат наук (22.12.2017)	А.В. Дворниченко (реферат, вступ, розд.1, висновки)
Відповідальний виконавець канд. фіз.-мат. наук, с.н.с. (22.12.2017)	В.О. Харченко (реферат, вступ, розд.1, висновки)
Виконавці:	
Ст. наук. співр. канд. фіз.-мат. наук (22.12.2017)	І.О. Лисенко (розд.1)
Ст. наук. співр. канд. фіз.-мат. наук (22.12.2017)	О.М. Щокотова (розд.1)
Ст. викладач канд. фіз.-мат. наук (22.12.2017)	А.М. Заскока (розд.1)
Ст. викладач канд. фіз.-мат. наук (22.12.2017)	Т.І. Жиленко (розд.1)
Ст. викладач канд. фіз.-мат. наук (22.12.2017)	В.М. Борисюк (розд.1)
Асистент мол. наук. співр. (22.12.2017)	А.Ю. Бадалян (розд.1)
Студент лаборант (22.12.2017)	А.Ю. Овчаренко (розд.1)
Студент лаборант (22.12.2017)	Я.А. Голоденко (розд.1)

## Реферат

Звіт про НДР: 40 с., 13 рис., 40 джерел.

### АДСОРБЦІЯ, ДЕСОРБЦІЯ, РЕАКЦІЙНО-ДИФУЗІЙНІ СИСТЕМИ, СТРУКТУРОУТВОРЕННЯ, ФАЗОВИЙ ПЕРЕХІД.

Об'єкт дослідження — процеси формування відокремлених структур адсорбату на поверхнях тонких плівок при конденсації в системах плазма-конденсат.

Метою роботи є встановлення умов та інтервалів зміни основних параметрів системи, що зводяться до коефіцієнту адсорбції, енергії взаємодії адсорбату між собою та сили анізотропії вертикальної дифузії адатомів, що зводиться до сили підведеного до підкладки зовнішнього електричного поля в системі плазма-конденсат з урахуванням анізотропії вертикальної дифузії адатомів між шарами багат шарової системи, коли на поверхні підкладки з плином часу можливим стає формування відокремлених структур адсорбату. До мети відноситься встановлення залежності стаціонарних значень концентрації адсорбату від основних параметрів системи; визначення умов реалізації переходів першого роду плазма-конденсат; встановлення залежності середньої відстані між відокремленими структурами від керуючих параметрів.

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

## Зміст

Вступ . . . . .	5
1 Умови формування відокремлених структур адсорбату в системі плазма-конденсат . . . . .	10
1.1 Модель багато-шарової системи плазма-конденсат . . . . .	10
1.2 Наближення одно-шарової системи . . . . .	15
1.3 Стаціонарні стани та переходи першого роду . . . . .	19
1.4 Лінійний аналіз на стійкість та умови формування відокремлених структур адсорбату . . . . .	26
1.5 Відмінність у структуруванні на нижніх і верхніх шарах . . . . .	32
Висновки . . . . .	35
Перелік джерел посилань . . . . .	36

## Вступ

Нано-фізика набуває все більшого інтересу у сучасній науці упродовж останніх декількох десятиліть. У першу чергу це пов'язано із стрімким розвитком сучасного приладобудування, електронної техніки та суспільства, загалом. Наноструктуровані об'єкти знаходять своє широке використання у сучасній наноелектроніці, комунікаційних приладах та пристроях, в біо-медицині, тощо. Така підвищена увага до нано-розмірних об'єктів обумовлена їх унікальними властивостями та функціональними здібностями. Серед останніх можна виділити: гігантський магнітоопір [1], контрольована оптична емісія [2], висока ефективність фотоелектричних перетворень [3], наднизька теплопровідність [4], тощо. Ці унікальні властивості дають можливість використовувати такі матеріали в магніторезистивних датчиках, пристроях пам'яті, оптичних та комунікаційних пристроях, лазерах на квантових точках і детекторах. Формування наноструктурованих об'єктів доволі часто спостерігається в тонкоплівочних системах, що робить їх предметом підвищеної уваги. Тому, актуальним на сьогодні є питання щодо з'ясування ролі основних механізмів, що приводять до утворення нано-структурних об'єктів, зокрема в тонких плівках, а також встановлення механізмів контролювання типом та розміром стаціонарних нано-структур на поверхнях тонких плівок.

Результати теоретичних та експериментальних досліджень показують, що використання різних матеріалів (металів, напівпровідників) дозволяє вирощувати нано-структури різного типу та розміру, а саме, рівновісні нано-точки (nanodots), рівновісні нано-дірки (nanoholes), та видовжені структури (stripes). Зокрема, експериментальні дослідження одиничного моношару Ag розташованого на поверхні Ru(100) при кімнатній температурі [5] дозволяють побачити, що нано-розмірні острови вакансій можуть організовуватися у досконалу трикутну ґратницю. При дослідженні процесів нано-структурування в напівпровідниках  $Ge/Si$  і  $Si/Si$  [6, 7] були отримані видовжені структури адсорбату. Дослідження процесів формування структур в металевих системах, зокрема,

$Cu/Pd$  та  $Ag/Cu$ , було проведено у роботах [8, 9].

Як було показано раніше [10, 11], процеси адсорбції та теплової десорбції є “рівноважними реакціями” та, тому, не можуть викликати формування кінетичних просторово модульованих фаз. При проходженні процесів адсорбції/десорбції на початкових стадіях процесів фазового розшарування можуть спостерігатися перехідні ближньовпорядковані структури [12]. Із плином часу ці структури дисоціюють, і у стаціонарному режимі адсорбат рівномірним чином розподілиться на підкладці. Для числового моделювання процесів формування відокремлених структур адсорбату у одношаровій моделі конденсації з газової фази авторами [10, 11, 13–16] було узагальнено модель адсорбції/десорбції шляхом врахування нерівноважних квазі-хімічних реакцій. Такі реакції зазвичай пов’язані з асоціативною десорбцією або з утворенням стабільних комплексів [13, 17, 18]. В цьому випадку з часом на підкладці можуть виникати стаціонарні нерівноважні структури адсорбату. Проблему формування стаціонарних мікроструктур у таких системах з необоротними нерівноважними хімічними реакціями було розглянуто у роботах [14, 15]; властивості структуроутворення у системах типу адсорбції-десорбції з дисипативною динамікою були досліджені у роботах [11, 16].

На сьогодні існує низка методів, що використовуються для вирощування нано-структурованих тонких плівок. Серед них можна виділити: хімічне осадження з газової фази (осадження за умов атмосферного тиску, низького тиску або високо вакуумне осадження); фізичне осадження (використання електронного пучка або імпульсного лазера); гомо- та гетероепітаксія. Використовуючи різні методи для осадження можна ефективно застосувати механізми для зростання нано-розмірного острову адсорбату: адсорбція/десорбції, дифузія, взаємодія адатомів. Упродовж останніх десятиліть рівновісні та видовжені нано-розмірні структури адсорбату спостерігалися в реальних експериментах та при числовому моделюванні у процесах осадження з газової фази та з використанням електронного пучка [19–26], в системах плазма-конденсат [27–29].

При дослідженні динаміки формування структур в багато-шарових моделях

окрім поверхневої дифузії вздовж зразка слід враховувати переходи адатомів між шарами. Слід зазначити, що внаслідок реалізації принципу мінімізації поверхневої енергії, адатоми з верхніх шарів будуть переходити на нижні. Це в свою чергу приводить до зменшення концентрації адсорбату на шарі зі зростом номеру шару, відрахованого від підкладки. Таким чином, за відсутності зовнішнього впливу на систему, вертикальна дифузії адатомів між шарами є анізотропною: дифузія адатомів з нижніх шарів вгору буде переважати протилежну дифузію. В роботі [30] авторами було показано, що в багато-шаровій системі газ-конденсат можливим є формування відокремлених структур адсорбату за рахунок зменшення концентрації адсорбату зі збільшенням номера шару. В роботі [31] авторами було показано, що морфологією та розмірами структур адсорбату можна керувати зарахунок зовнішнього впливу, який викликаний тиском газової фази. В такому разі імовірність переходів адатомів з верхніх шарів на нижні переважає імовірність зворотного переходу.

З теоретичної точки зору, при описі процесу конденсації, загалом, використовуються моделі, що належать до класу реакційно-дифузійних систем. Як відомо з попередніх теоретичних робіт, системи реакційно-дифузійного типу відіграють важливу роль у вивченні загальної просторово-часової поведінки нерівноважних систем. Зазвичай такі моделі містять головні внески пов'язані як з локальною динамікою (хімічні реакції типу народження-смерть) так і з перенесенням маси. Для спостереження хімічних реакцій на металевих поверхнях на атомістичному рівні на сьогодні використовуються такі новітні експериментальні методи як польова йонна мікроскопія та скануюча тунельна мікроскопія. Таким чином, у процесах адсорбції-десорбції такі експериментальні методи дозволяють досліджувати формування кластерів або островів адсорбованих молекул/атомів [32], що можуть мати лінійний розмір нано-масштабу [33]. Такі структури на масштабах менших за дифузійну довжину виникають завдяки сумісному впливові квазі-хімічних реакцій та процесів взаємодії між адсорбованими частинками. Наявність адсорбату може впливати на локальні кристалографічні структури на поверхневому шарі субстрату, викликаючи далеко

діючі взаємодії між адсорбованими атомами та їх кластерами (див. наприклад роботи [34–36]).

Метою даної роботи було встановлення умов реалізації відокремлених структур адсорбату в багато-шаровій моделі системи плазма-конденсат, яку широко використовується для вирощування нанорозмірних відокремлених структур адсорбату на тонких плівках. З літератури [27, 28] відомо, що в таких системах осаджені атоми є іонізованими і зростаюча поверхня служить ефективним катодом. Таким чином, під впливом підведеного до підкладки електричного поля частина осаджених атомів десорбує у плазму, де додатково іонізується та знов адсорбується на зростаючу поверхню. [37]. Такі технологічні умови приводять до конденсації осаджених атомів на верхні шари зростаючої поверхні. Таким чином вертикальна дифузія адатомів між шарами стає анізотропною з більшою ефективністю дифузії адатомів від нижчих шарів до верхніх, викликаною наявністю підведеного до підкладки електричного поля. Процеси утворення наноструктурованих тонких плівок у системах плазма-конденсат в основному вивчаються експериментально. В роботі [29] авторами було показано, що врахування такої анізотропії вертикальної дифузії адатомів між шарами приводить до формування відокремлених структур адсорбату та не потребує додаткового врахування нерівноважних квазі-хімічних реакцій. В той самий час немає докладного теоретичного опису впливу індукованої електричним полем анізотропної дифузії адсорбату на динаміку та статистичні властивості структур адсорбату. В даній роботі нами буде побудовано математичну модель для моделювання процесів формування та росту відокремлених структур адсорбату на поверхнях тонких плівок при конденсації в системах плазма-конденсат з урахуванням анізотропії вертикальної дифузії адатомів між шарами багатошарової системи. Будуть отримані залежності стаціонарних значень концентрації адсорбату від основних керуючих параметрів системи, що зводяться до коефіцієнту адсорбції, енергії взаємодії адсорбату між собою та сили анізотропії вертикальної дифузії адатомів, що зводиться до сили підведеного до підкладки зовнішнього електричного поля в системі плазма-конденсат. Будуть встановле-



ні умови реалізації переходів першого роду та встановлено умови структурування адсорбату у відокремлені острови.

Робота побудована наступним чином. У наступному розділі ми побудуємо узагальнену модель реакційно-дифузійного типу для опису процесів конденсації в системі плазма-конденсат, що враховує процеси адсорбції, десорбції, переходи адатомів між шарами, взаємодію адсорбату між собою та дифузію адатомів вздовж підкладки. У третьому розділі ми дослідимо випадок однорідної системи, де встановимо залежність стаціонарних значень концентрації адсорбату від керуючих параметрів системи та встановимо умови реалізації переходів першого роду. У четвертому розділі ми визначимо області параметрів системи, коли можливим є формування відокремлених структур адсорбату при конденсації в системі плазма-конденсат. Визначимо вплив сили анізотропії вертикальної дифузії адатомів на зміну морфології поверхні. Основні висновки по роботі наведено в останньому розділі.

# 1 Умови формування відокремлених структур адсорбату в системі плазма-конденсат

## 1.1 Модель багато-шарової системи плазма-конденсат

Для дослідження процесів формування нано-островів адсорбату при конденсації розглянемо модель з лише одним типом частинок. При дослідженні багат шарових моделей, окрім реакцій, що відбуваються на поверхні кожного шару (адсорбція/десорбція) та дифузії вздовж шару слід враховувати можливість переходу адсорбованих частинок між шарами. Зазвичай для врахування такого ефекту використовують стандартну ізотропну вертикальну дифузію [38, 39]. Проте за умови формування багат шарових відокремлених структур адсорбату така ізотропність вертикальної дифузії порушується за рахунок того, що концентрація адсорбату на верхніх шарах є меншою за концентрацію адсорбату на нижніх шарах. У загальному випадку ізотропію вертикальної дифузії можна порушити за рахунок зовнішнього впливу. Так, в системі газ-конденсат за умови слабого вакууму в камері перехід адатомів з верхніх шарів до нижніх стає більш імовірним, ніж зворотній перехід. Такі дослідження проводилися у роботі [31], де авторами було показано, що процесом формування структур адсорбату можна керувати за допомогою імовірностей переходу між шарами. Було показано, що для формування структур адсорбату на наступному шарі необхідним є досягнення критичної концентрації адсорбату на даному шарі та досягнення структурами адсорбату на попередньому шарі критичного розміру. Нами буде розглянуто систему плазма-конденсат, де дія зовнішнього електричного поля, підведеного до підкладки, приводить до анізотропії у вертикальній дифузії, коли адатоми з більшою імовірністю переходять з нижчих рівнів на верхні, ніж навпаки.

Для побудови моделі багато-шарової адсорбції будемо відстежувати динаміку концентрації адсорбату  $x_n(\mathbf{r}, t)$  на  $n$ -тому рівні (моноатомному шарі), де  $t$  — часова змінна,  $\mathbf{r} = \{x, y\}$  — просторова координата. Досліджуючи багат шарову систему уведемо вектор  $\vec{x}(\mathbf{r}, t)$ , що має компоненти  $\{x_n(\mathbf{r}, t)\}_{n=1}^N$ , де  $N$  задає загальну кількість шарів багато-шарової моделі. У загальному випад-

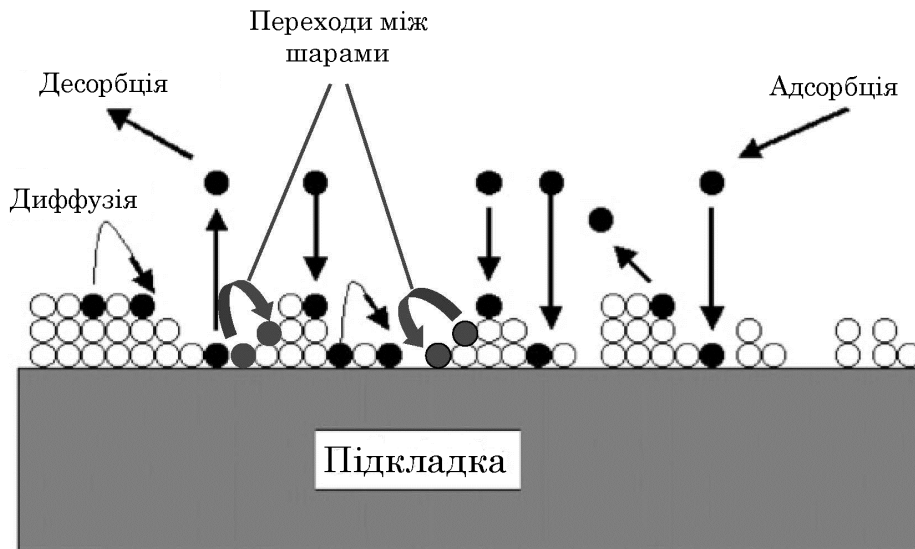


Рисунок 1.1 — Схематичне представлення основних процесів, що протікають в процесі конденсації.

ку, набір всіх реакції, що протікають на кожному  $n$ -тому шарі, буде задаватися реакційною складовою  $R_n(\vec{x}(\mathbf{r}, t))$ , які є складовими вектору  $\vec{R}(\vec{x}(\mathbf{r}, t)) = \{R_n(\vec{x}(\mathbf{r}, t))\}_{n=1}^N$ . Оскільки адсорбовані атоми є рухомими взаємодіючими частинками, врахуємо відповідні дифузійні потоки на кожному шарі  $\mathbf{J}_n(\vec{x}(\mathbf{r}, t), \nabla)$ , де  $\nabla \equiv \partial/\partial\mathbf{r}$ . Для  $N$ -шарової системи набір таких потоків можна об'єднати в один вектор,  $\vec{\mathbf{J}}(\vec{x}(\mathbf{r}, t), \nabla) = \{\mathbf{J}_n(\vec{x}(\mathbf{r}, t), \nabla)\}_{n=1}^N$ . Таким чином, узагальнена модель багато-шарової моделі конденсації з газової фази може бути записана у вигляді узагальненого реакційно-дифузійного рівняння:

$$\partial_t \vec{x}(\mathbf{r}, t) = \vec{R}(\vec{x}(\mathbf{r}, t)) - \nabla \cdot \vec{\mathbf{J}}(\vec{x}(\mathbf{r}, t), \nabla). \quad (1)$$

Далі детально розглянемо компоненти вектору  $\vec{R}$ , що визначає локальну динаміку системи (1). Схематичне представлення основних процесів, що протікають в процесі конденсації наведено на рис. 1.1. Процеси адсорбції на  $n$ -тому шарі характеризуються відповідною константою адсорбції  $k_{an}$  та тиском газової фази  $P$ . Крім того адсорбція можлива на місця вільні від адатомів на даному шарі, та потребує вільних місць на верхніх шарах й ненульової концентрації адсорбату на нижніх шарах. Таким чином, на  $n$ -тому шарі багато-шарової системи швидкість адсорбції задається виразом  $k_{an} P x_{n-1} \prod_{j=i}^N (1 - x_j)$ , де враховано, що  $x_0 = 1$  відповідає підкладці. Коефіцієнт адсорбції визнача-

ється через енергію адсорбції  $E_{an}$ , температуру  $T$ , виміряну в енергетичних одиницях, та префактор  $\nu$  у стандартному вигляді:  $k_{an} = \nu e^{-E_{an}/T}$ . Процеси десорбції на  $n$ -тому шарі протікають зі швидкістю  $k_{dn} = k_d^0 \exp(U_n(\mathbf{r})/T)$ , де  $k_d^0$  — швидкість десорбції не взаємодіючих частинок,  $U_n(\mathbf{r})$  — потенціал взаємодії адсорбату на  $n$ -тому шарі. Швидкість десорбції  $k_{dn}^0 = \nu e^{-E_{dn}/T}$  визначає обернений час життя адатому:  $\tau_{dn} = [k_{dn}^0]^{-1}$ , де  $E_{dn}$  — енергія десорбції. Таким чином, процеси десорбції даються внеском  $-k_{dn}x_n(1-x_{n+1})$ , де враховано, що адатом може десорбувати з  $n$ -того шару тільки якщо на  $n+1$ -му шарі є вільні від адсорбату місця, враховуючи умову взаємодії адсорбату на даному шарі та між даним й нижніми шарами (substratum mediated interactions). Крім наведених вище внесків до реакційної складової слід також врахувати, що адатоми можуть переходити між сусідніми шарами. При цьому, при переході адатому з  $i$ -того шару на  $j$ -тий шар, на останньому має бути місце, вільне від адсорбату. У загальному випадку, переходи між двома сусідніми шарами можуть відбуватися з різними ймовірностями. Зокрема, при наявності додаткового тиску, перехід адатому з верхнього шару на нижній є більш імовірним, ніж зворотний перехід [31]. Такі переходи даються внеском  $k_{n+1 \rightarrow n}x_{n+1}(1-x_n) + k_{n-1 \rightarrow n}x_{n-1}(1-x_n) - k_{n \rightarrow n+1}x_n(1-x_{n+1}) - k_{n \rightarrow n-1}x_n(1-x_{n-1})$ , де  $\{k_{i \rightarrow j}\}$  — відповідні швидкості переходів з  $i$ -того до  $j$ -того шару. У даній роботі ми зконцентруємо нашу увагу на дослідженні процесів конденсації в системі плазма-конденсат в багато-шаровій моделі за умови анізотропії вертикальної дифузії адатомів, тобто нееквівалентності ймовірностей переходів між шарами, а саме,  $k_{n \rightarrow n+1} > k_{n \rightarrow n-1}$ . При цьому ми також врахуємо, що переходи з першого шару на нульовий (субстрат) та з  $N$ -того (найверхнього) на  $N+1$ -ий — неможливі.

Як було зазначено вище, в системі плазма-конденсат анізотропія вертикального потоку адатомів викликана дією підведеного до підкладки електричного поля, напруженість якого задається виразом  $\mathbf{E} = -\nabla\phi$ , де  $\phi$  — різниця електричних потенціалів. Відповідний додатковий вертикальний потік адатомів визначається виразом:  $\mathbf{J}_{n\uparrow\downarrow}^E = (\mathbf{E}ZeD_{\uparrow\downarrow}/T)x_n$ , де  $Z$  — валентність іону, а  $e$  —

заряд електрону. Враховуючи, що цей потік можливий лише на вільні місця отримуємо:

$$-\nabla \cdot \mathbf{J}_{n\uparrow\downarrow}^E = -uD_{\uparrow\downarrow} [x_{n-1}(1-x_n) - x_n(1-x_{n+1})], \quad (2)$$

де  $u = |\mathbf{E}|Ze/T$  визначає силу анізотропії вертикальної дифузії адатомів. Отже, уводячи позначення  $u \equiv k_{n \rightarrow n+1} > k_{n \rightarrow n-1}$  для реакційної складової, що описує переходи адатомів між шарами маємо:

$$f_{\uparrow\downarrow} = f_u(x_n, x_{n-1}, x_{n+1}) + f_{diff}(x_n, x_{n-1}, x_{n+1}), \quad (3)$$

де

$$\begin{aligned} f_u &= u [(1-x_n)x_{n-1} - x_n(1-x_{n+1})], \\ f_{diff} &= k_{n \rightarrow n-1} [x_{n+1} + x_{n-1} - 2x_n]. \end{aligned} \quad (4)$$

Далі встановимо вигляд потоку адсорбату  $\mathbf{J}_n$  на кожному шарі багато-шарової системи. Будемо враховувати звичайну горизонтальну дифузію вздовж шару  $-D_n \nabla x_n$ , де  $D_n = D_0 e^{-E_{Dn}/T}$  — коефіцієнт дифузії на  $n$ -тому шарі ( $D_0$  — префактор,  $E_{Dn} \simeq E_{an}/3$  — енергія активації дифузії) та складову, пов'язану із взаємодією, що визначається силою  $F_n = -\nabla U_n$ , яка задає швидкість  $v_n = (D_n/T)F_n$ ; відповідний потік адсорбату  $v_n x_n$  можливий лише на  $(1-x_n)$  вільних місць. Отже, загальний потік адсорбату на  $n$ -тому шарі дається виразом:

$$\mathbf{J}_n = -D_n \nabla x_n - (D_n/T) x_n (1-x_n) \nabla U_n. \quad (5)$$

Тут, множник  $x_n(1-x_n)$  вказує на те що, потік можливий лише на  $(1-x_n)$  вільних вузлів. Тоді, уводячи мобільність  $\mu(x_n) = x_n(1-x_n)$ , повний потік можна переписати у вигляді:

$$\mathbf{J}_n = -D_n \mu(x_n) \left[ \frac{\nabla x_n}{\mu(x_n)} - \frac{1}{T} \nabla U_n \right]. \quad (6)$$

Формально, цей потік може бути записаний у канонічному вигляді

$$\mathbf{J}_n = -D_n \mu(x_n) \nabla \frac{\delta F}{\delta x_n}; \quad (7)$$

де повний функціонал вільної енергії визначається сумою не взаємодіючої  $F_0$  та взаємодіючої  $F_{int}$  частин. Не взаємодіюча частина має форму

$$F_0 = \int d\mathbf{r} [x_n(\mathbf{r}) \ln(x_n(\mathbf{r})) + (1 - x_n(\mathbf{r})) \ln(1 - x_n(\mathbf{r}))], \quad (8)$$

у той час як  $F_{int}$  визначається потенціалом взаємодії  $U$  стандартним чином:  $F_{int} = 1/2 \int x_n(\mathbf{r}) U_n(\mathbf{r} - \mathbf{r}') d\mathbf{r}$ . Згідно з роботою [11] потенціал взаємодії  $U_1$  для першого (найнижчого) шару багато-шарової системи маємо:  $U_1 = - \int u_1(r - r') x_1(r') dr'$ , де  $-u_1(\mathbf{r})$  це бінарний притягуючий потенціал двох частинок, розділених відстанню  $\mathbf{r}$ . Цей потенціал має симетричну форму, тобто  $\int d\mathbf{r} \mathbf{r}^{2i+1} u_1(\mathbf{r}) = 0, i = 1, \dots, \infty$ . В якості простого наближення для потенціалу  $u_1(\mathbf{r})$ , слідуючи роботам [15, 23–25] виберемо Гаусову форму:

$$u_1(r) = \frac{2\epsilon_1}{\sqrt{4\pi r_{01}^2}} \exp\left(-\frac{r^2}{4r_{01}^2}\right), \quad (9)$$

де  $\epsilon_1$  — енергія взаємодії адсорбату,  $r_{01}$  — радіус взаємодії. Далі, діючи у стандартний спосіб [23–25, 31], за умови того, що концентрація адсорбату слабо змінюється в околі радіусу взаємодії, використаємо розвинення  $U_1$  та залишаючи три не зникаючі члени, для  $u_1$  отримаємо:

$$\int u_1(\mathbf{r} - \mathbf{r}') x_1(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' \simeq \epsilon_1 x_1(\mathbf{r}) + \epsilon_1 (1 + r_{01}^2 \nabla^2)^2 x_1(\mathbf{r}). \quad (10)$$

Далі, слідуючи роботі [40], використаємо припущення, що потенціал  $u(r)$  кожному шарі є однаковим, тобто,  $u(r) \equiv u_i(r)$  та  $\epsilon \equiv \epsilon_i$ . Це, в свою чергу, дає  $r_0 \equiv r_{0i}$ . Таким чином, для другого шару маємо:  $U_2(r) = x_1(r) \left\{ - \int u(r - r') x_2(r') dr' \right\}$ . У загальному випадку для  $n$ -того шару потенціал взаємодії має вигляд

$$U_n(\mathbf{r}) \simeq -\epsilon x_{n-1}(\mathbf{r}) \left\{ x_n(\mathbf{r}) + (1 + r_0^2 \nabla^2)^2 x_n(\mathbf{r}) \right\} \quad (11)$$

де  $\nabla U_n = -\epsilon x_{n-1}(\mathbf{r}) \nabla \left\{ x_n(\mathbf{r}) + (1 + r_0^2 \nabla^2)^2 x_n(\mathbf{r}) \right\}$ . Враховуючи, що товщина зростаючою плівки є малою (декілька моноатомних шарів), використаємо наближення про те, що коефіцієнти адсорбції, десорбції, вертикальної та горизонтальної дифузії є однаковими для кожного шару, тобто  $k_a = k_{an}, k_d^0 = k_{dn}^0, k_r = k_{rn}, k_{ij} = k_{i \rightarrow j}, D = D_n$ . Тоді, уводячи дифузійну довжину  $L_d = \sqrt{D/k_d^0}$  та використовуючи просторовий масштаб  $r' = r/L_d$ , покладемо  $\rho_0 = r_0/L_d$ ,

$\varepsilon \equiv \epsilon/T$  (розглядається випадок постійної температури),  $\alpha \equiv k_{ap}/k_d^0$ ,  $u \equiv k_{ij}/k_d^0$  та  $t' \equiv tk_d^0$  (далі опустимо штрихи). У такому випадку за умови  $x_0 = 1$  безрозмірна модель багато-шарової конденсації з газової фази набуває наступного вигляду:

$$\begin{aligned} \partial_t x_1 &= \alpha \prod_{n=1}^N (1 - x_n) - x_1(1 - x_2)e^{-2\varepsilon x_1} \\ &+ f_u(x_1, 1, x_2) + f_{diff}(x_1, 1, x_2) \\ &+ \nabla \cdot [\nabla x_1 - \varepsilon \mu(x_1) \times \nabla \{x_1 + (1 + \rho_0^2 \nabla^2)^2 x_1\}]; \end{aligned} \quad (12)$$

$$\begin{aligned} &\vdots \\ \partial_t x_n &= \alpha x_{n-1} \prod_{j=n}^N (1 - x_j) - x_n(1 - x_{n+1})e^{-2\varepsilon x_n x_{n-1}} \\ &+ f_u(x_n, x_{n-1}, x_{n+1}) + f_{diff}(x_n, x_{n-1}, x_{n+1}) \\ &+ \nabla \cdot [\nabla x_n - \varepsilon \mu(x_n) x_{n-1} \times \nabla \{x_n + (1 + \rho_0^2 \nabla^2)^2 x_n\}]; \end{aligned} \quad (13)$$

$$\begin{aligned} &\vdots \\ \partial_t x_N &= \alpha(1 - x_N) - x_N e^{-2\varepsilon x_N x_{N-1}} \\ &+ f_u(x_N, x_{N-1}, 0) + f_{diff}(x_N, x_{N-1}, 0) \\ &+ \nabla \cdot [\nabla x_N - \varepsilon \mu(x_N) x_{N-1} \times \nabla \{x_N + (1 + \rho_0^2 \nabla^2)^2 x_N\}]. \end{aligned} \quad (14)$$

Система рівнянь (12)–(14) є загальною системою для дослідження процесів еволюції адсорбату на кожному рівні багато-шарової системи плазма-конденсат.

## 1.2 Наближення одно-шарової системи

У даному розділі розглянемо систему рівнянь (12)–(14) багатошарової моделі конденсації в системі плазма-конденсат у наближенні одного шару. Еволюція концентрації адсорбату на  $n$ -тому шарі багато-шарової системи задається рівнянням

$$\partial_t x_n = R(x_n) - \nabla J(x_n; \nabla), \quad (15)$$

де  $R(x_n)$  визначає реакційну складову на  $n$ -тому шарі, а  $J(x_n; \nabla)$  — потік адсорбату вздовж на  $n$ -того шару. Схематично вигляд багатошарової системи подано на рис.1.2 зліва. Спочатку визначимо, яким чином співвідносяться концентрації

адсорбату на сусідніх рівнях. Будемо вважати, що концентрація адсорбату на кожному верхньому шарі багато-шарової системи є меншою за концентрацію адсорбату на даному шарі. При цьому будемо використовувати припущення про те, що:

$$(x_n - x_{n+1}) \simeq (x_{n-1} - x_n) = \beta. \quad (16)$$

Дане припущення приводить до висновку, що доданок  $f_{diff}$  в рівнянні (4) є малим, порівняно із  $f_u$ , тому що величина  $[x_{n+1} + x_{n-1} - 2x_n] \rightarrow 0$  є стандартною одномірною просторовою похідною у вертикальному напрямку, і отже без втрати загальності їм можна знехтувати.

Розглянемо випадок формування сферичних островів адсорбату при конденсації. Схематично вигляд багатошарового симетричного острову адсорбату подано на рис.1.2 справа. Тут  $S_0$  це площа підкладки, радіус  $R_0$  якої визначає-

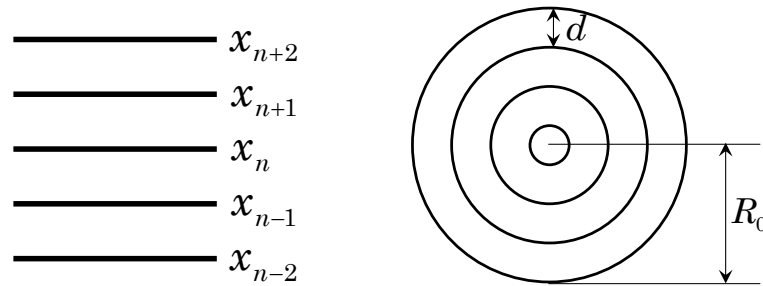


Рисунок 1.2 — Схематичне представлення багатошарової системи (зліва) та вигляд багатошарового симетричного острову адсорбату (справа).

ться зі співвідношення  $S_0 = \pi R_0^2$ . Тоді, концентрація адсорбату на підкладці (на нульовому рівні):  $x_0 = \frac{S_0}{S_0} \equiv 1$ . Враховуючи умову формування відокремлених структур адсорбату на поверхні підкладки для першого рівня маємо:

$$R_1 = R_0 - d \Rightarrow S_1 = \pi R_1^2 = \pi(R_0 - d)^2 \quad x_1 = \frac{S_1}{S_0}, \quad d < R_0.$$

Тут  $d$  це різниця між радіусом (лінійним розміром) субстрату (підкладки) та радіусом острову адсорбату на першому рівні багато-шарової системи. Використовуючи співвідношення (16) для будь-якого  $n$ -того рівня багато-шарової системи можна записати:

$$R_n = R_0 - nd \Rightarrow S_n = \pi(R_0 - nd)^2; \quad x_n = \frac{S_n}{S_0}. \quad (17)$$



Отже концентрація адсорбату на  $n$ -тому рівні визначається зі співвідношення:

$$x_n = \left(1 - n \frac{d}{R_0}\right)^2 = \left(1 - n \frac{d}{R_0}\right)^2 = 1 - 2n \frac{d}{R_0} + n^2 \left(\frac{d}{R_0}\right)^2 \quad (18)$$

З рівняння (18) випливає, що концентрація адсорбату на  $n$ -тому рівні визначається відношенням  $d/R_0$  та номером шару  $n$ .

Далі, використовуючи умову  $d/R_0 < 1$  розглянемо два випадки. Перший з них це випадок кілька перших (нижчих) шарів багато-шарової системи. Тут можна покласти  $n^2(d/R_0)^2 \rightarrow 0$ , що приводить наступних виразів для трьох сусідніх шарів:

$$\begin{aligned} x_n &\simeq 1 - 2n \frac{d}{R_0} \\ x_{n-1} &\simeq 1 - 2(n-1) \frac{d}{R_0} = x_n + \beta_0 \\ x_{n+1} &\simeq 1 - 2(n+1) \frac{d}{R_0} = x_n - \beta_0, \end{aligned} \quad (19)$$

де уведено позначення  $\beta_0 = 2d/R_0$ . Таким чином, ми прийшли до рівняння (16), де  $\beta = \beta_0$ .

Другий випадок це випадок верхніх шарів багат шарової системи. Тут, на відміну від попереднього випадку, незважаючи на те що  $(d/R_0)^2 \rightarrow 0$  добуток  $n^2(d/R_0)^2$  є скінченною величиною через те, що  $n > 1$ . У такому випадку концентрація адсорбату на трьох сусідніх рівнях, відповідно до рівняння (18) визначається з наступних рівнянь:

$$\begin{aligned} x_n &\simeq 1 - 2n \frac{d}{R_0} + n^2 \left(\frac{d}{R_0}\right)^2 \\ x_{n-1} &= 1 - 2(n-1) \frac{d}{R_0} + (n-1)^2 \left(\frac{d}{R_0}\right)^2 \\ x_{n+1} &= 1 - 2(n+1) \frac{d}{R_0} + (n+1)^2 \left(\frac{d}{R_0}\right)^2. \end{aligned} \quad (20)$$

Далі, використовуючи припущення про те, що  $2n > 1$  концентрації адсорбату на  $n-1$ -му  $n+1$ -му рівнях можна записати у наступний спосіб:

$$\begin{aligned} x_{n-1} &= x_n + \beta_0 - \left(\frac{d}{R_0}\right)^2 (2n-1) \simeq x_n + \beta_0 - 2n \left(\frac{d}{R_0}\right)^2 \\ x_{n+1} &= x_n - \beta_0 + \left(\frac{d}{R_0}\right)^2 (2n+1) \simeq x_n - \beta_0 + 2n \left(\frac{d}{R_0}\right)^2. \end{aligned} \quad (21)$$

Далі, використовуючи рівняння (18) для концентрацій адсорбату на  $n - 1$ -му та  $n + 1$ -му рівнях маємо:

$$\begin{aligned}x_{n-1} &= x_n + \beta(x_n) \\x_{n+1} &= x_n - \beta(x_n) \\ \beta(x_n) &= \beta_0 \sqrt{x_n}.\end{aligned}\tag{22}$$

Таким чином для верхніх шарів також виконується умова (16), проте на відміну від випадку нижніх шарів, маємо більш складну залежність концентрації адсорбату на  $(n - 1)$ -му та  $(n + 1)$ -му рівнях від концентрації адсорбату на  $n$ -тому рівні.

Отже, аналізуючи рівняння (19) та (22) можна зробити висновок про те, що концентрація адсорбату на рівнях, сусідніх до даного, поблизу субстрату та на верхніх рівнях буде по-різному залежати від концентрації адсорбату на досліджуваному рівні.

Далі, використовуючи співвідношення (22) запишемо вирази для складових реакційної компоненти  $R(x_n)$  на  $n$ -тому рівні багато-шарової системи. У загальному випадку покладемо  $\beta = \beta(x)$ . Будемо враховувати, що наявність адсорбату в певній області простору на  $(n - 1)$ -му рівні означає заповненість адсорбатом цієї ж області простору на  $(n - 2)$ -му рівні; а наявність вільного місця на  $(n + 1)$ -му рівні означає відсутність адсорбату на  $(n + 2)$ -рівні. Іншими словами, досліджуючи зміну концентрації адсорбату  $x_n \in [0, 1]$  на  $n$ -тому рівні будемо враховувати:  $x_i = 0$  ( $i < n - 1$ );  $x_{n-1} \in [0, x_n + \beta(x_n)]$ ;  $x_{n+1} \in [0, x_n - \beta(x_n)]$ ;  $x_i = 1$  ( $i > n + 1$ ). У такому випадку адсорбція на  $n$ -тому рівні задається виразом:

$$f_a = \alpha x_{n-1} (1 - x_n) (1 - x_{n+1}) = \alpha (1 - x_n) (x_n + \beta(x_n)) (1 - x_n + \beta(x_n)).\tag{23}$$

Десорбція визначається рівнянням

$$f_d = -x_n x_{n-1} (1 - x_{n+1}) e^{-2\varepsilon x_n x_{n-1}} = -x_n (x_n + \beta(x_n)) (1 - x_n + \beta(x_n)) e^{-2\varepsilon x_n (x_n + \beta(x_n))}.\tag{24}$$

Складова, що описує переходи адатомів між шарами, індуковані дією підведе-

ного до підкладки електричного поля, набуває вигляду:

$$\begin{aligned} f_u = & u [(1 - x_n)x_{n-1} - x_n(1 - x_{n+1})] = \\ & u [(1 - x_n)(x_n + \beta(x_n)) - x_n(1 - x_n + \beta(x_n))] = u\beta(x_n)(1 - 2x_n). \end{aligned} \quad (25)$$

Таким чином, для реакційної складової на  $n$ -тому рівні  $R(x_n)$ , яка визначається сумою  $R(x_n) = f_a(x_n) + f_d(x_n) + f_u(x_n)$ , уводячи позначення  $x = x_n$ , та  $\nu(x) = \mu(x) + (\beta(x) + 1)\beta(x)$ , маємо:

$$R(x) = \alpha(1 - x)\nu(x) - x\nu(x)e^{-2\epsilon x(\beta(x)+x)} + u\beta(x)(1 - 2x). \quad (26)$$

Далі визначимо вигляд дифузійного потоку адсорбату вздовж досліджуваного шару. Відповідно до проведених у попередньому розділі міркувань, такий потік задається наступним рівнянням:

$$\begin{aligned} J(x; \nabla) = & -D_{\perp} \nabla x - \frac{D}{T} \mu(x) \nabla U(x) \\ \nabla U \simeq & -\epsilon(x + \beta(x)) \nabla [x + (1 + \rho_0^2 \nabla^2)^2 x] \end{aligned} \quad (27)$$

Уводячи позначення  $\varepsilon = \epsilon/T$  та комбінуючи всі отримані вирази, рівняння еволюції адсорбату (15) на будь-якому  $n$ -тому рівні набуває наступного вигляду:

$$\partial_t x = R(x) + D_{\perp} \nabla \cdot [\nabla x - \varepsilon \mu(x)(\beta(x) + x) \nabla \{x + (1 + \rho_0^2 \nabla^2)^2 x\}] \quad (28)$$

У наступних розділах нами буде досліджено рівняння (28) в однорідному та неоднорідному випадках.

### 1.3 Стаціонарні стани та переходи першого роду

Основною метою даного розділу є дослідження залежності стаціонарної концентрації на виділеному шарі багато-шарової системи від основних керуючих параметрів системи та встановлення умов реалізації переходів першого роду в системі плазма-конденсат, еволюція якої задається рівнянням (28). Для цього розглянемо випадок однорідної системи, вважаючи  $\nabla \cdot \mathbf{J} = 0$ . Розглядаючи стаціонарний випадок покладемо  $\partial_t x = 0$ . Таким чином залежність стаціонарних станів концентрації адсорбату від керуючих параметрів системи, що зводяться до коефіцієнту адсорбції  $\alpha$ , енергії взаємодії адсорбату (або оберненої

температури)  $\varepsilon$ , ширини тераси (різниці в концентрації адсорбату на сусідніх рівнях)  $\beta_0$  та сили анізотропії вертикального переходу адатомів між шарами  $u$ , викликаній дією підведеного до підкладки електричного поля, визначається з розв'язків рівняння  $R(x) = 0$ . Будемо розглядати випадок верхніх шарів, коли  $\beta = \beta(x) = \beta_0\sqrt{x}$ . Спершу зафіксуємо енергію взаємодії адсорбату  $\varepsilon$  та ширину тераси  $b$  та прослідкуємо зміну стаціонарної концентрації адсорбату  $x_{st}$  від коефіцієнта адсорбції  $\alpha$  при різних значеннях сили анізотропії вертикального переходу адатомів між шарами  $u$ . Відповідну залежність  $x_{st}(\alpha)$  подано на рисунку 1.3. З рисунка видно, що при малому значенні інтенсивності вертикальної

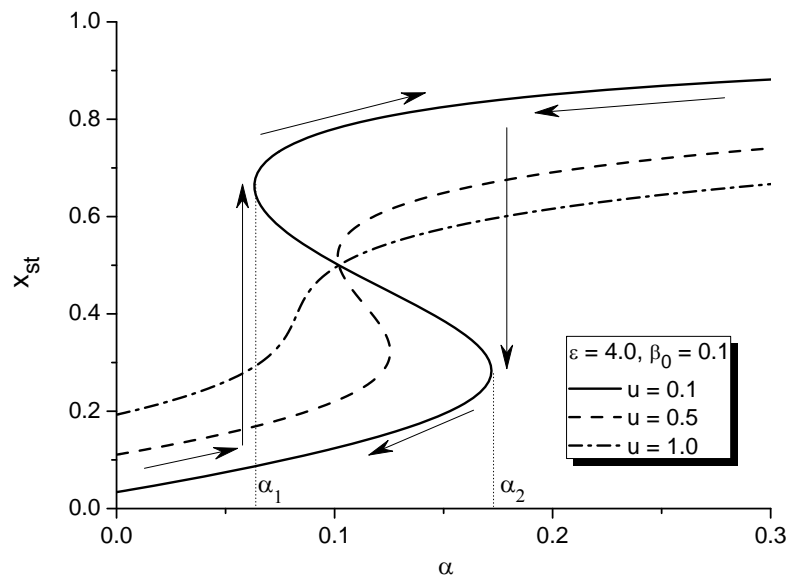


Рисунок 1.3 — Залежність стаціонарної концентрації адсорбату  $x_{st}$  від коефіцієнта адсорбції  $\alpha$  при різних значеннях сили анізотропії вертикального переходу адатомів між шарами  $u$  при фіксованих  $\varepsilon = 4.0$  та  $\beta_0 = 0.1$ .

анізотропії  $u$  в системі зі збільшенням коефіцієнту адсорбції  $\alpha$  реалізується перехід першого роду (див. суцільну криву на рис.1.3 при  $u = 0.1$ ). Тобто існує певна область значень коефіцієнту адсорбції, коли можливим є три значення стаціонарної концентрації. Так, зі збільшенням коефіцієнту адсорбції від нуля при досягненні певного критичного значення  $\alpha = \alpha_1$  стаціонарна концентрація адсорбату стрибком приймає підвищене значення. Навпаки, при зменшенні коефіцієнту адсорбції при досягненні критичного значення  $\alpha = \alpha_2$  стаціонарна концентрація адсорбату стрибком приймає занижене значення. Стрілками наведено відповідні переходи. Збільшення інтенсивності вертикальної анізотропії

$u$  при інших фіксованих параметрах системи приводить до звуження інтервалу  $(\alpha_1, \alpha_2)$ , коли реалізується перехід першого роду (пор. суцільну та штрихову криві на рис.1.3). При великих значеннях  $u$  (див. штрих-пунктирну криву при  $u = 1$ ) в системі завжди існує лише один розв'язок  $x_{st}(\alpha)$ .

Далі розглянемо залежність стаціонарного значення концентрації адсорбату  $x_{st}$  на досліджуваному шарі багато-шарової системи від сили анізотропії вертикальної дифузії адатомів  $u$ , викликаній дією підведеного до підкладки електричного поля, при зміні коефіцієнту адсорбції  $\alpha$  та фіксованих інших параметрів. Результати відповідних розрахунків подано на рисунку 1.4. Тут, при

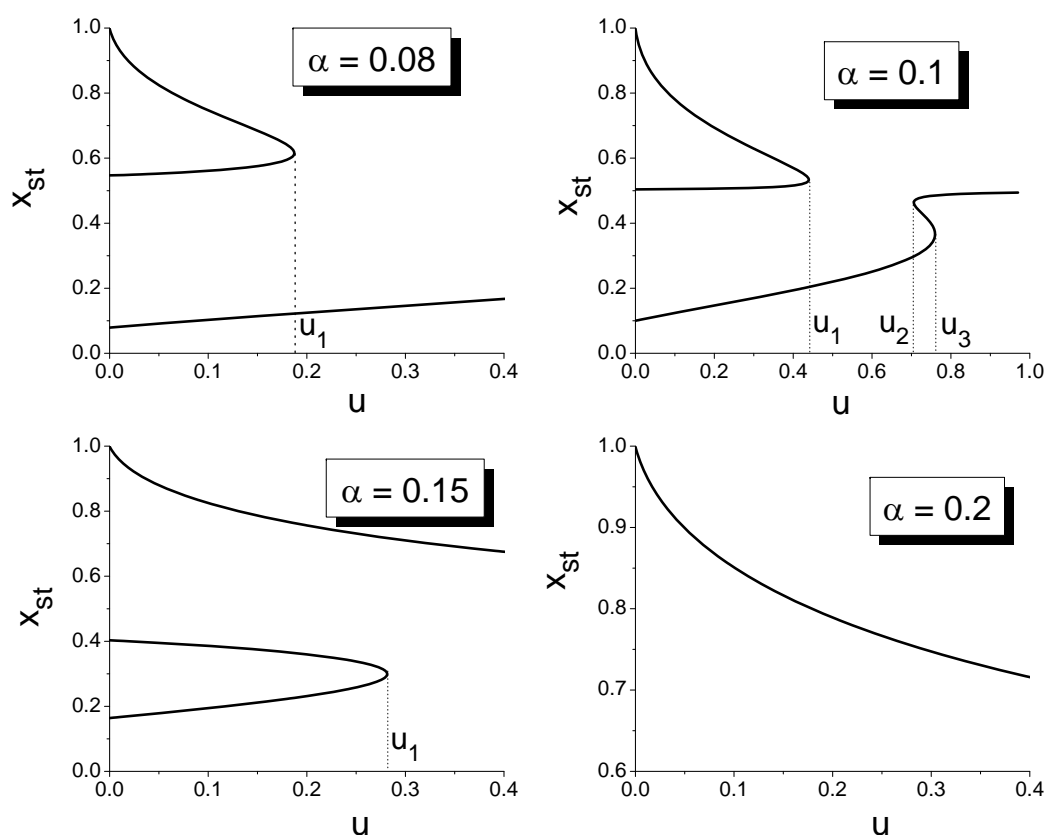


Рисунок 1.4 — Залежність стаціонарної концентрації адсорбату  $x_{st}$  від сили анізотропії вертикального переходу адатомів між шарами  $u$  при різних значеннях коефіцієнта адсорбції  $\alpha$  при фіксованих  $\varepsilon = 4.0$  та  $\beta_0 = 0.1$ .

малих значеннях коефіцієнту адсорбції  $\alpha$  (див. панель  $\alpha = 0.08$  на рис. 1.4) та малих значеннях сили анізотропії вертикальної дифузії  $u < u_1$  в системі реалізується три стаціонарні значення. При цьому один стан характеризується малим значенням стаціонарної концентрації (розбавлений стан або фаза пла-

зми), а два інші стани характеризуються великим значенням стаціонарної 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 коефіцієнту адсорбції маємо більш складну залежність стаціонарної концентрації від сили анізотропії вертикальної дифузії адатомів  $u$  (див. панель  $\alpha = 0.1$  на рис. 1.4). Тут три стаціонарні стани реалізуються як при малих  $u < u_1$  та і при підвищених  $u_2 < u < u_3$ . При цьому збільшення  $\alpha$  приводить до збільшення  $u_1$ . Таким чином, маємо три точки фазового переходу:  $u_1, u_2, u_3$ . Подальше збільшення коефіцієнту адсорбції приводить  $\alpha$  до трансформації залежності  $x_{st}(u)$ , коли один стан характеризується великим значенням концентрації адсорбату (щільна фаза), а два інших відповідають малій концентрації адсорбату: проміжний стан, як і у випадку малих  $\alpha$  є не стійким, а стан із найменшим значенням концентрації є стійким (розбавлена фаза) (див. панель  $\alpha = 0.15$  на рис. 1.4). Нарешті, при досить великих значеннях коефіцієнту адсорбції  $\alpha$  маємо однозначну залежність  $x_{st}(\alpha)$  (див. панель  $\alpha = 0.2$  на рис. 1.4) з  $x_{st}(u) > 0.5$  (щільна фаза).

Отримані залежності стаціонарної концентрації від коефіцієнту адсорбції  $x_{st}(\alpha)$  та сили анізотропії вертикальної дифузії  $x_{st}(u)$  дають можливість встановити вигляд фазової діаграми, що обмежує область існування трьох розв'язків залежності  $x_{st}(u)$  та  $x_{st}(\alpha)$ , тобто область бістабільності. Для розрахунку відповідної фазової діаграми  $\alpha(u)$  для кожного значення сили анізотропії вертикальної дифузії  $u$  визначалися критичні значення параметра адсорбції  $\alpha_1$  та  $\alpha_2$  із відповідної залежності  $x_{st}(\alpha)$  при фіксованих значеннях енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon$  та ширини тераси багато-шарової структури  $\beta_0$ . Вплив параметру  $\beta_0$  на зміну області бістабільності при  $\varepsilon = 4$  подано на рисунку 1.5. Тут I — область бістабільності; II — щільна фаза; III — розбавлена фаза. З рисунка видно, що при фіксованому значенні енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon$  збільшення параметру  $\beta_0$  приводить до зменшення області бістабільності I. При цьому максимально можливе значення сили анізотропії вертикальної дифузії  $u_c$ , ко-

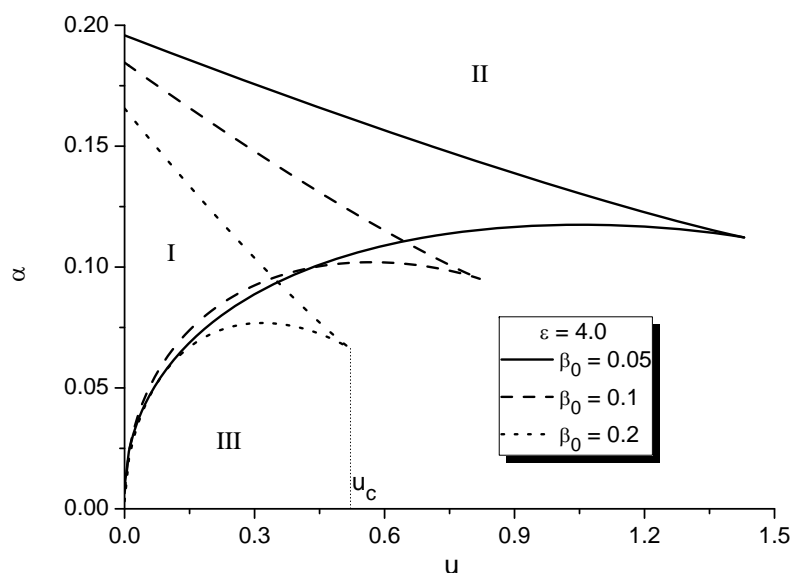


Рисунок 1.5 — Фазова діаграма  $\alpha(u)$  при  $\varepsilon = 4$  та різних  $\beta_0$ : I — область бістабільності; II — щільна фаза; III — розбавлена фаза.

ли можливим є реалізація бістабільного стану, зменшується зі збільшенням  $\beta_0$ , а вся область бістабільного розв'язку реалізується на менших значеннях коефіцієнту адсорбції  $\alpha$ . Слід відзначити, що при великих значеннях параметра  $\beta_0$  маємо реверсивний характер виникнення області бістабільності при певних значеннях коефіцієнту адсорбції (див. криву  $\beta_0 = 0.2$  на рис. 1.5). Така складна залежність  $\alpha(u)$  пояснює реалізації точок  $u_2$  та  $u_3$  на залежності  $x_{st}(u)$  при  $\alpha = 0.08$  (див. рис. 1.4).

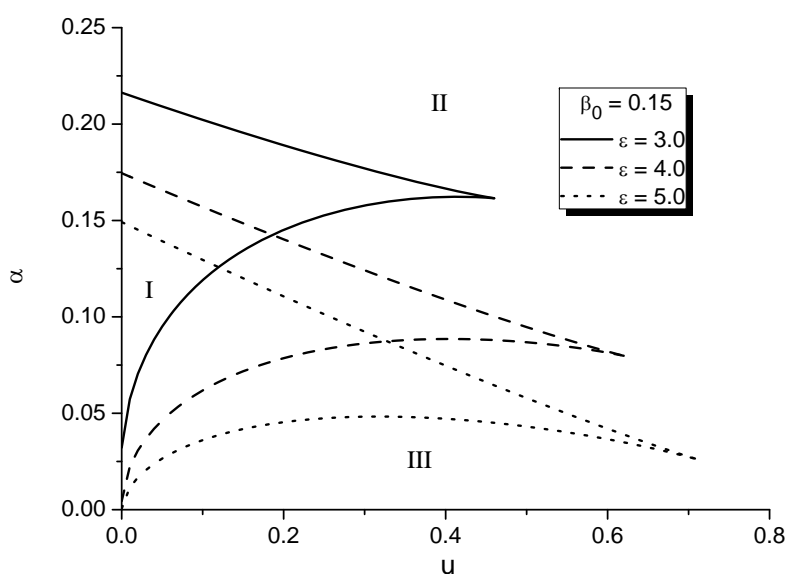


Рисунок 1.6 — Фазова діаграма  $\alpha(u)$  при  $\beta_0 = 0.15$  та різних  $\varepsilon$ : I — область бістабільності; II — щільна фаза; III — розбавлена фаза.

Вплив енергії взаємодії адсорбату (оберненої температури) на зміну області бістабільності наведено на рисунку 1.6 при  $\beta_0 = 0.15$ . Тут області позначено у спосіб, аналогічно до рис. 1.5. Тут зі збільшенням енергії взаємодії адсорбату область бістабільності зменшується в напрямку малих значень коефіцієнту адсорбції  $\alpha$ , а відповідне критичне значення сили анізотропії вертикальної дифузії  $u_c$  збільшується. Крім того, при великих значеннях  $\varepsilon$  також можливою стає ситуація реверсивного характеру виникнення області бістабільності (див. криву при  $\varepsilon = 5$  на рис. 1.6).

На рисунку 1.7 наведено фазову діаграму в площині  $(\varepsilon, \alpha)$  при фіксованому  $\beta_0 = 0.1$  та різних значеннях сили анізотропії  $u$ . З рисунка видно, що збільшення сили анізотропії вертикальної дифузії приводить до звуження області бістабільності I, зміщення її в область менших значень коефіцієнту адсорбції  $\alpha$  та зменшення мінімального значення енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon_c$ , коли реалізується дана область.

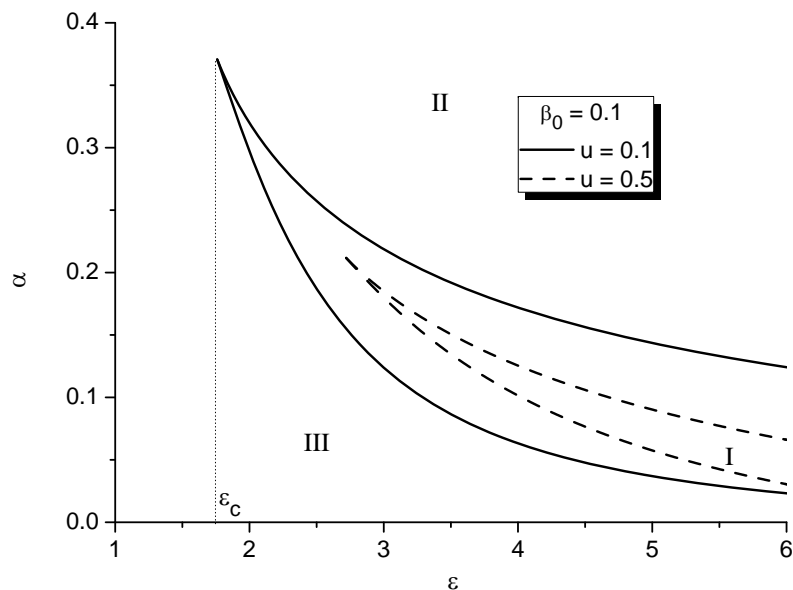


Рисунок 1.7 — Фазова діаграма  $\alpha(\varepsilon)$  при  $\beta_0 = 0.1$  та різних  $u$ : I — область бістабільності; II — щільна фаза; III — розбавлена фаза.

Наприкінці даного розділу розглянемо еволюцію концентрації адсорбату  $x(t)$  в однорідній системі плазма-конденсат, що описується рівнянням

$$\partial_t x = R(x), \quad (29)$$

де реакційна складова  $R(x)$  визначається рівнянням (26). Для цього будемо чи-



сельно інтегрувати рівняння (29). При числовому інтегруванні початкове значення концентрації було прийнято близьким до нуля, вважаючи досліджуваних шар майже вільним від адсорбату. Результати розрахунків при різних значеннях параметрів системи подано на рисунку 1.8. З рисунка видно, що збільшення

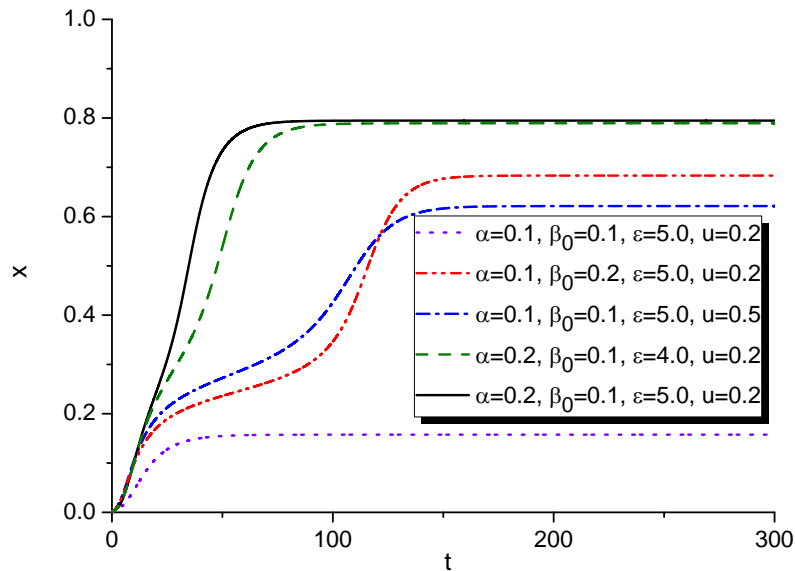


Рисунок 1.8 — Еволюція концентрації адсорбату в однорідній системі плазма-конденсат при різних значеннях параметрів системи.

коефіцієнту  $\beta_0$  приводить до пришвидшення росту концентрації адсорбату та переходу від розбавленого стану з розбавленого стану з  $x < 0.5$  до щільного стану з  $x > 0.5$  (порівняй пунктирну та штрих-пунктир-пунктирну криві при  $\beta_0 = 0.1$  та  $\beta_0 = 0.2$ , відповідно). Аналогічний ефект спостерігається як при збільшенні сили анізотропії вертикальної дифузії  $u$  (порівняй пунктирну та штрих-пунктирну криві при  $u = 0.2$  та  $u = 0.5$ , відповідно), так і при збільшенні коефіцієнту адсорбції  $\alpha$  (порівняй пунктирну та суцільну криві при  $\alpha = 0.1$  та  $\alpha = 0.2$ , відповідно). Зменшення енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon$  приводить до уповільнення росту концентрації адсорбату на початкових стадіях еволюції системи (порівняй суцільну та штрихову криві при  $\varepsilon = 5$  та  $\varepsilon = 4$ , відповідно).

У наступному розділі буде проведено лінійний аналіз на стійкість отриманих однорідних стаціонарних станів до неоднорідних збурень з метою встановлення умов структуроутворення.

#### 1.4 Лінійний аналіз на стійкість та умови формування відокремлених структур адсорбату

Метою даного розділу є встановлення умов формування (області значень основних параметрів системи) відокремлених структур адсорбату на виділеному шарі багато-шарової системи при конденсації в системі плазма-конденсат. Для цього нами буде проведено лінійний аналіз на стійкість однорідного стаціонарного стану  $x_{st}$  до неоднорідних збурень. В рамках стандартної процедури розглянемо відхилення концентрації адсорбату від стаціонарного однорідного стану:  $\delta x = x - x_{st}$ . Далі, розкладемо в ряд реакційну складову  $R(x)$  в околі стаціонарного рівноважного стану  $x_{st}$ :

$$R(x) \simeq R(x_{st}) + \left. \frac{dR(x)}{dx} \right|_{x=x_{st}} \delta x. \quad (30)$$

В рамках лінійного аналізу на стійкість розв'язок для відхилення  $\delta x(t, r)$  шукається у наступному вигляді:

$$\delta x(t, r) \propto e^{\lambda(k)t} e^{ikr}, \quad (31)$$

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

$$\frac{\partial}{\partial t} \delta x(t, r) = \lambda(k) \delta x \quad \frac{\partial}{\partial r} \delta x(t, r) = ik \delta x. \quad (32)$$

Таким чином, використовуючи зв'язки (32) та рівняння (30) рівняння еволюції (28) для відхилення  $\delta x$  від стаціонарного однорідного стану набуває наступного вигляду:

$$\begin{aligned} \lambda(\kappa) \delta x = & R(x_{st}) + \left. \frac{dR(x)}{dx} \right|_{x=x_{st}} \delta x \\ & - D_{\perp} \kappa^2 [1 - \varepsilon \mu(x_{st})(\beta(x_{st}) + x_{st}) \{1 + (1 - \rho_0^2 \kappa^2)^2\}] \delta x, \end{aligned} \quad (33)$$

де  $\kappa = kLd$  — безрозмірний хвильовий вектор. Враховуюче те, що стаціонарне однорідне значення концентрації адсорбату  $x_{st}$  визначається з умови  $R(x) = 0$ , то в результаті маємо  $R(x_{st}) = 0$ . Беручи до уваги  $\delta x \neq 0$  скорочуємо зліва

й справа на  $\delta x$  та приходимо до рівняння на показник стійкості однорідного стаціонарного стану до неоднорідних збурень  $\lambda(k)$  у вигляді

$$\lambda(\kappa) = \lambda(0) - D_{\perp} \kappa^2 [1 - \varepsilon \gamma(x_{st}) \{1 + (1 - \rho_0^2 \kappa^2)^2\}], \quad (34)$$

де  $\lambda(0) = \left. \frac{dR(x)}{dx} \right|_{x=x_{st}}$ ,  $\gamma(x_{st}) = \mu(x_{st})(\beta(x_{st}) + x_{st})$ .

Згідно зі стандартної теорії 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 реалізовуватися сценарій фазового розширення. 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:  $\lambda(\kappa) d\lambda(\kappa)/d\kappa = 0$ . Оскільки величина  $\rho_0 \ll 1$  ( $\rho_0 = r_0/Ld$ , де радіус взаємодії адатомів  $r_0 \sim 10^{-9}$ м, а дифузійна довжина для більшості металів та напівпровідників  $Ld \sim 10^6$ м,  $\rho_0 \sim 10^{-3}$ ), то поклавши  $\rho_0^4 \kappa^4 \simeq 0$  рівняння (34) можна записати у спрощеному вигляді:

$$\lambda(\kappa) = \lambda(0) - D_{\perp} \kappa^2 [1 - 2\varepsilon \gamma(x_{st}) (1 - \rho_0^2 \kappa^2)]. \quad (35)$$

З аналізу залежності (35) випливає, що в границі великих  $\kappa$  показник стійкості  $\lambda(\kappa)$  буде від'ємним. Таким чином необхідними та достатніми умовами для формування відокремлених структур адсорбату в досліджуваній 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 показника стійкості від хвильового числа (35) можна знайти умови виникнення просторових нестійкостей. Такий підхід дозволяє отримати фазову діаграму, що ілю-

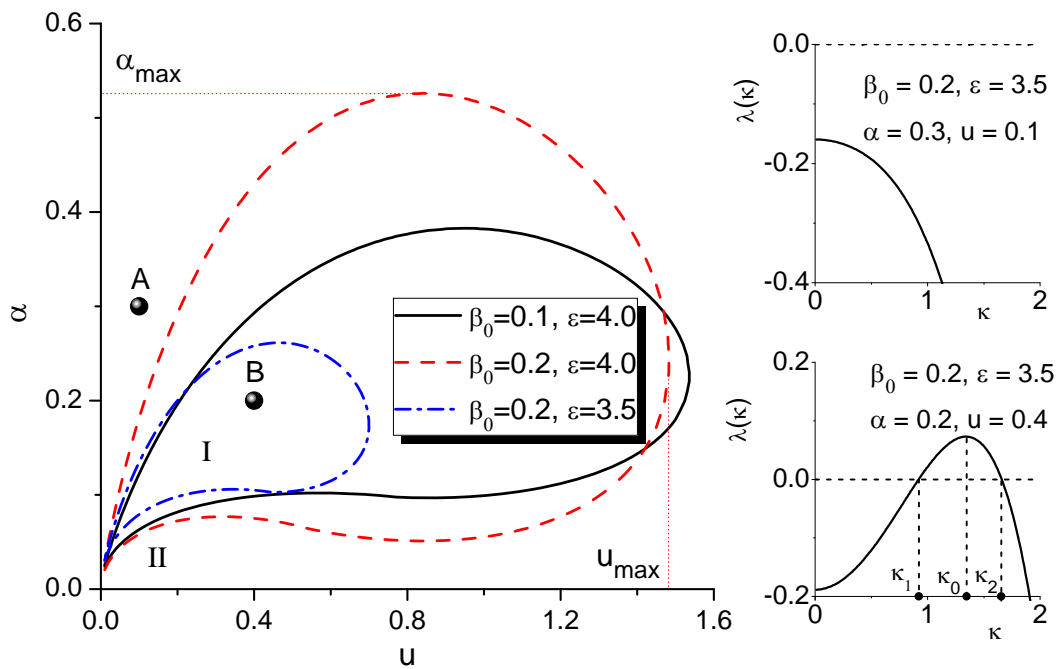


Рисунок 1.9 — Діаграма стійкості однорідного стаціонарного стану до неоднорідних збурень: при значеннях параметрів системи з області I будуть формуватися відокремлені структури адсорбату; область II характеризується однорідним розподілом адсорбату на досліджуваному шарі. Справа наведено залежності показника стійкості від хвильового числа в точці A на діаграмі (зверху) та в точці B (знизу).

струватиме область параметрів системи, коли можливим буде формування відокремлених структур адсорбату на досліджуваному шарі багато-шарової системи плазма-конденсат.

Результати проведення розрахунків області реалізації відокремлених структур адсорбату подано на рисунку 1.9 у площині сила анізотропії вертикальної дифузії — коефіцієнт адсорбції  $(u, \alpha)$ . На рисунку наведено залежності  $(u, \alpha)$  при різних  $\varepsilon$  та  $\beta_0$ , що обмежує область існування просторових структур в системі. При значеннях параметрів системи зовні обмеженої області (область II) з плином часу адсорбат однорідно покриє досліджуваний шар і жодних відокремлених структур адсорбату не виділиться. Типову залежність показника стійкості в області реалізації однорідного розподілу адсорбату (в точці A з діаграми) подано на рис.1.9 справа зверху. Видно, що при всіх значеннях хвильового числа  $\kappa$  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. Типова

залежність показника стійкості в області I (в точці B да діаграмі) представлена на рис.1.9 справа знизу. Тут показник стійкості  $\lambda(\kappa)$  приймає позитивні значення в обмеженому інтервалі хвильових чисел  $(\kappa_1, \kappa_2)$ . Це свідчить про те, що в ній в системі будуть формуватися просторові збурення (структури), період розташування яких у  $r$ -просторі прийматиме значення від  $r_1 \propto 1/\kappa_2$  до  $r_2 \propto 1/\kappa_1$ . Максимальне значення показника стійкості відповідає значенню хвильового числа  $\kappa_0$ . Це хвильове число визначає середній період розташування структур адсорбату (період просторових збурень в системі).

Аналізуючи отримані залежності  $(u, \alpha)$  при різних  $\varepsilon$  та  $\beta_0$  перш за все слід зазначити, що у випадку ізотропної вертикальної дифузії, тобто відсутності електричного поля біля підкладки, що задовольняється умовою  $u = 0$ , незалежно від коефіцієнту адсорбції  $\alpha$ , енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon$  та коефіцієнту  $\beta_0$  реалізація відокремлених структур є неможливою. Проаналізуємо детально залежність  $(u, \alpha)$  при  $\varepsilon = 4$  та  $\beta_0 = 0.2$  (див. штрихову криву на рис.1.9). Область реалізації просторових структур (область I) є обмеженою так, що мінімальне можливе значення коефіцієнту адсорбції  $\alpha_{min}$  прямує до нуля при прямуванні до нуля сили анізотропії вертикальної дифузії. При цьому також існує верхня межа в значеннях як коефіцієнту адсорбції, що визначається значенням  $\alpha_{max}$  так і сили анізотропії  $u_{max}$ . Отже, фіксуючи значення сили анізотропії вертикальної дифузії, тобто фіксуючи напруженість підведеного до підкладки електричного поля та збільшуючи коефіцієнт адсорбції, тобто тиск плазми, маємо наступні структурні перетворення в морфології досліджуваного шару: при низькому тиску плазми (малі  $\alpha$ ) адсорбат однорідним чином покриває шар з малою концентрацією. Іншими словами на поверхні досліджуваного шару не досягається певне пересичення адсорбатом, яке б дало поштовх для утворення відокремлених структур адсорбату. При перетинанні залежності  $(u, \alpha)$  переходимо в область I і адатоми починають формувати відокремлені структури. Подальше збільшення коефіцієнту адсорбції (тиску плазми) приводить до переходу з області I в область II і на поверхні шару реалізується однорідний розподіл адсорбату високої концентрації. Це означає, що інтенсивність процесів адсорб-

ції суттєво переважає процеси десорбції та подавляє анізотропію вертикальної дифузії адатомів. Таким чином, збільшення коефіцієнту адсорбції приводить до реверсивного характеру упорядкування (структурування) на досліджуваному шарі. Аналогічний ефект реверсивності спостерігається і при збільшенні/зменшенні напруженості підведеного до підкладки електричного поля при сталому значенні коефіцієнту адсорбції: при малих значеннях сили анізотропії її недостатньо для того, щоб ініціювати процеси формування структур, а при великих  $u$  сильна анізотропія приводить до суттєвого зменшення концентрації адсорбату на даному шарі, а отже неможливим є досягання необхідного пересичення шару адсорбатом, щоб формувалися відокремлені структури. Цікаво відзначити, що при невеликих значеннях коефіцієнту адсорбції  $\alpha$  збільшення сили анізотропії  $u$  приводить до більш складної картини структурних перетворень у морфології досліджуваного шару. Так при збільшенні  $u$  маємо подвійну реверсивність у структуруванні поверхні: перехід з області II в область I, потім знову в II і при великих  $u$  — знову в область I.

Далі дослідимо зміну морфології області існування відокремлених структур адсорбату (I) при зміні енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon$  та параметра  $\beta_0$ . З рисунка 1.9 видно, що зменшення енергії взаємодії адсорбату приводить до суттєвого зменшення максимальних значень коефіцієнта адсорбції  $\alpha_{max}$  та сили анізотропії вертикальної дифузії  $u_{max}$ , проте морфологія самої області залишається незмінною (пор. штрихову та щтрих-пунктирну криві при  $\varepsilon = 4.0$  та  $\varepsilon = 3.5$ , відповідно). При цьому зменшення параметру  $\beta_0$  приводить до зміни у морфології області шляхом витягування її вздовж параметра  $u$ , приводячи тим самим до зменшення максимального значення коефіцієнту адсорбції  $\alpha_{max}$  та збільшення максимального значення сили анізотропії  $u_{max}$ .

Далі розглянемо залежності хвильових чисел  $\kappa_1$ ,  $\kappa_2$ , які визначають границі інтервалу позитивних значень коефіцієнту стійкості  $\lambda$ , та  $\kappa_0$ , який визначає середній період розташування просторових збурень (відокремлених структур адсорбату) від коефіцієнту адсорбції  $\alpha$ , сили анізотропії вертикальної дифузії  $u$ , енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon$  та параметру  $\beta_0$ . Відповідні залежності подано

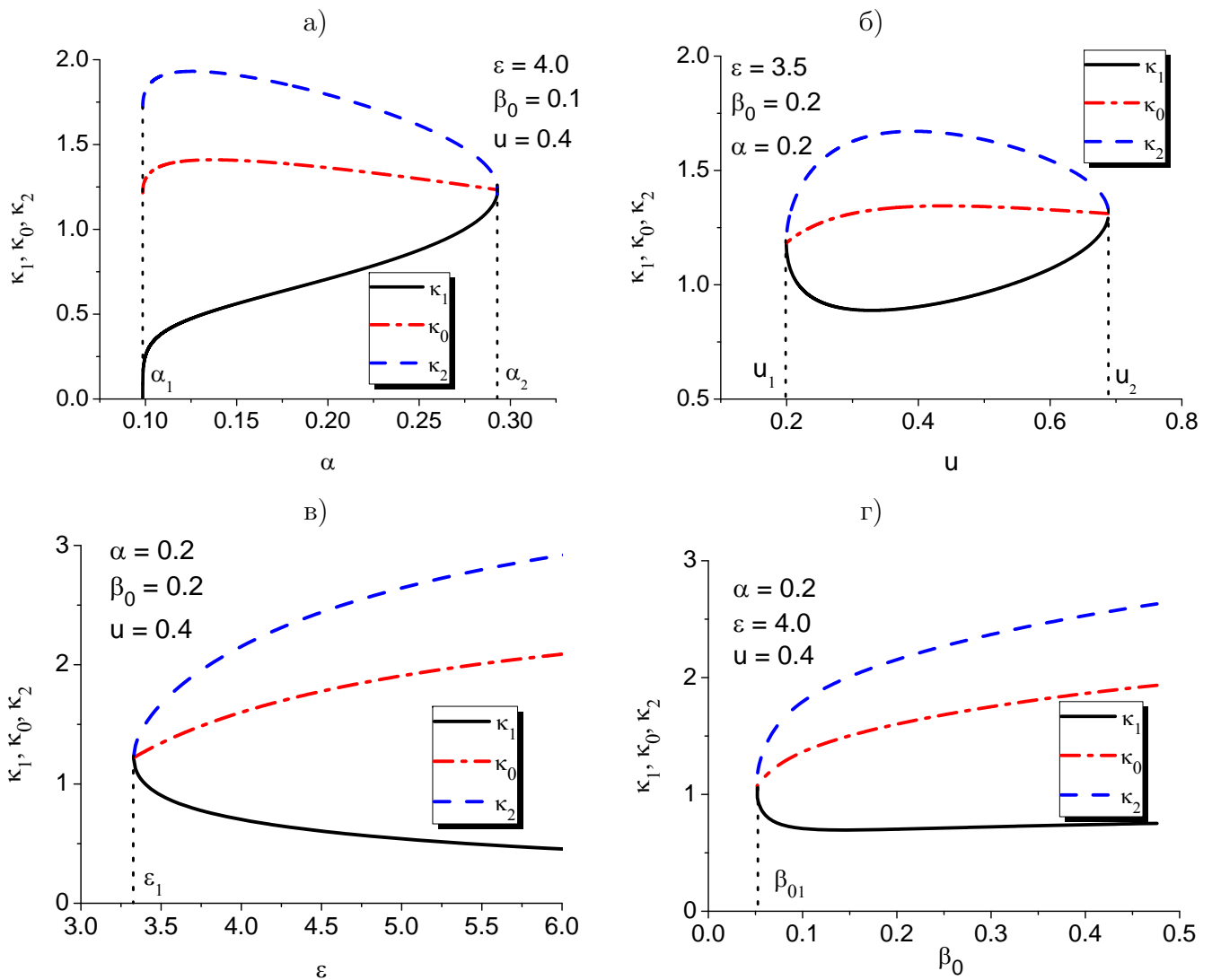


Рисунок 1.10 — Залежності хвильових чисел  $\kappa_1$ ,  $\kappa_2$ , які визначають границі інтервалу позитивних значень коефіцієнту стійкості  $\lambda$ , та  $\kappa_0$ , який визначає середній період розташування просторових збурень (відокремлених структур адсорбату) від а) коефіцієнту адсорбції  $\alpha$ ; б) сили анізотропії вертикальної дифузії  $u$ ; в) енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon$ ; г) параметру  $\beta_0$ .

на рисунках 1.10а,б,в,г, відповідно. Спочатку розглянемо детально залежність хвильових чисел від коефіцієнту адсорбції при фіксованих інших параметрах системи (див. рис.1.10а). Реалізація відокремлених структур можлива лише при значеннях  $\alpha$  з інтервалу  $(\alpha_1, \alpha_2)$ . При чому при переході коефіцієнтом адсорбції значення  $\alpha_1$  всі значення вказаних хвильових чисел відрізняються. Це означає, що в точці  $\alpha = \alpha_1$  маємо картину, близьку до картини фазового розшарування, коли параметр стійкості  $\lambda$  набуває позитивних значень в інтервалі  $(\kappa_1, \kappa_2)$  з  $\kappa_1 = 0$ . Збільшення коефіцієнту адсорбції приводить до звуження

цього інтервалу значень хвильових чисел і при  $\alpha = \alpha_2$  всі три хвильові числа мають одне значення і вся залежність  $\lambda(\kappa)$  прямує в область негативних значень з  $\lambda(\kappa_1) = \lambda(\kappa_0) = \lambda(\kappa_2) = 0$ . При цьому середній період розташування структур адсорбату на досліджуваному шарі зі збільшенням коефіцієнту адсорбції спочатку зменшується (збільшення  $\kappa_0$ ), а потім збільшується (зменшення  $\kappa_0$ ). Залежність хвильових значень від сили вертикальної анізотропії, подана на рис.1.10б є подібною до залежності з рис.1.10а. Тут також є два граничних значення для сили анізотропії  $u_1$  та  $u_2$ , що обмежують значення  $u$ , коли можливим є формування відокремлених структур адсорбату; середній період розташування структур адсорбату зі збільшенням сили анізотропії спочатку падає, а потім збільшується. Проте, на відміну від попереднього випадку, як при  $u = u_1$  так і при  $u = u_2$  маємо  $\lambda(\kappa_1) = \lambda(\kappa_0) = \lambda(\kappa_2) = 0$ . Залежність хвильових чисел від енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon$  (див.рис.1.10в) відрізняється топологічно від попередніх двох тим, що тут існує одне критичне значення енергії взаємодії адсорбату  $\varepsilon_1$ , так, що при  $\varepsilon > \varepsilon_1$  на поверхні шару будуть формуватися відокремлені структури адсорбату. При цьому збільшення  $\varepsilon$  приводить до зменшення середньої відстані між структурами. Залежність хвильових чисел від параметру  $\beta_0$  (рис.1.10г) топологічно ідентична до залежності від енергії взаємодії.

### 1.5 Відмінність у структуруванні на нижніх і верхніх шарах

У попередніх двох розділах ми досліджували зміну концентрації адсорбату та умови формування відокремлених структур адсорбату на верхніх шарах багато-шарової системи, поклавши  $\beta(x) = \beta_0\sqrt{x}$ . У даному розділі ми проведемо порівняльний аналіз для випадку верхніх шарів та нижніх шарів, для останніх маємо  $\beta(x) = \beta_0$ .

Перш за все, дослідимо чим відрізняється область бістабільності для однорідної системи на двох різних рівнях багато-шарової системи. На рисунку 1.11 наведено фазову діаграму в площині  $(u, \alpha)$ , що обмежує область бістабільності для випадку верхніх (суцільна крива) та нижніх (штрихова крива) шарів.



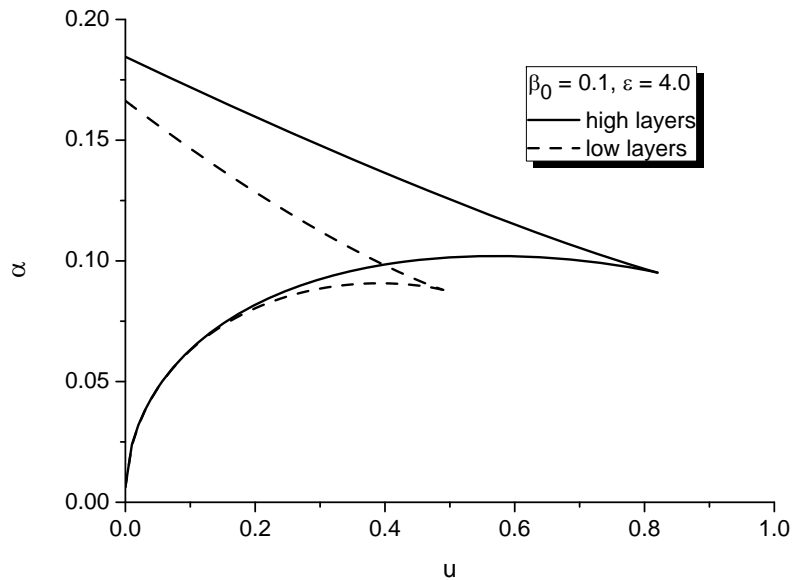


Рисунок 1.11 — Діаграма бістабільності стаціонарного однорідного стану  $\alpha(u)$  при  $\varepsilon = 4$ ,  $\beta_0 = 1$  для нижніх шарів ( $\beta(x) = \beta_0$ ) та верхніх шарів ( $\beta(x) = \beta_0\sqrt{x}$ ) багато-шарової системи.

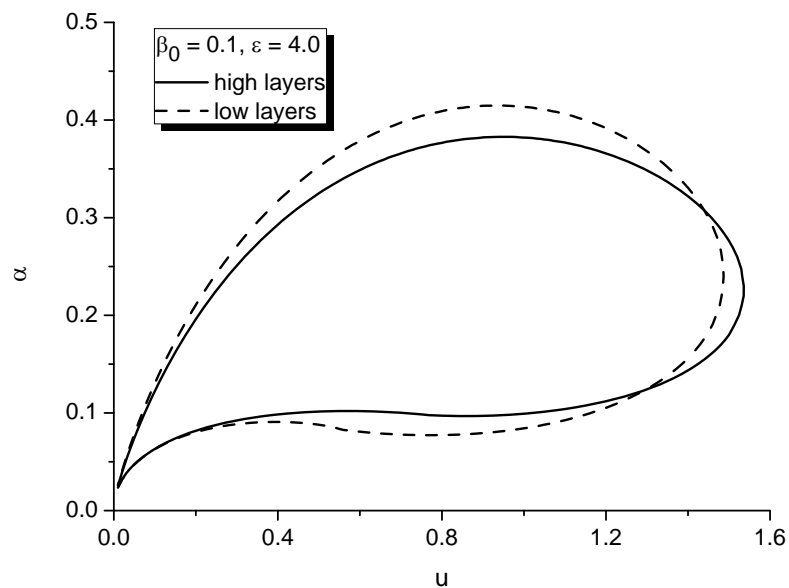


Рисунок 1.12 — Діаграма структуроутворення  $\alpha(u)$  при  $\varepsilon = 4$ ,  $\beta_0 = 1$  для нижніх шарів ( $\beta(x) = \beta_0$ ) та верхніх шарів ( $\beta(x) = \beta_0\sqrt{x}$ ) багато-шарової системи.

З рисунка видно, що порівняно із верхніми шарами, на нижній шарах область реалізації трьох однорідних стаціонарних станів концентрації адсорбату зменшується та зміщується в бік малих значень коефіцієнту адсорбції та сили анізотропії вертикальної дифузії.

На рисунку 1.12 представлено вигляд області реалізації відокремлених структур адсорбату в площині  $(u, \alpha)$  на верхніх (суцільна крива) та нижніх (штри-

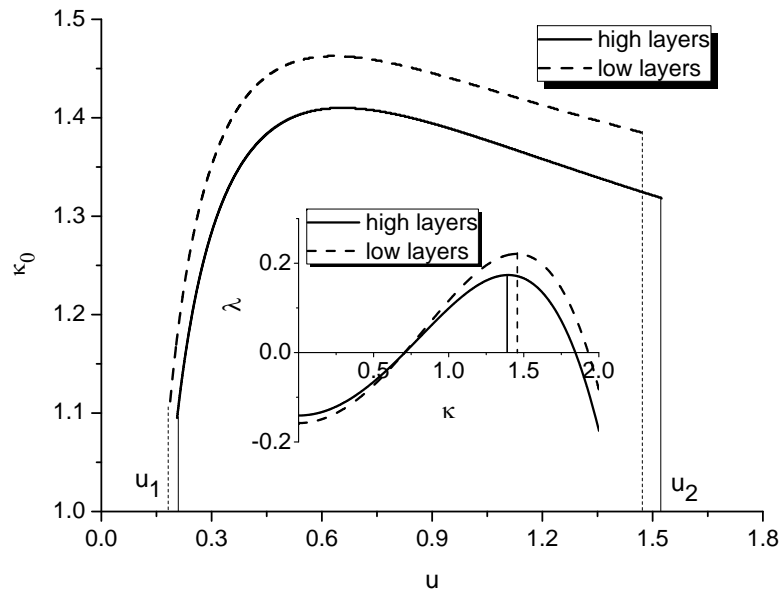


Рисунок 1.13 — Залежність середнього періоду розташування структур адсорбату від сили анізотропії вертикальної дифузії  $u$  при  $\varepsilon = 4$ ,  $\beta_0 = 1$   $\alpha = 0.2$  для нижніх шарів ( $\beta(x) = \beta_0$ ) та верхніх шарів ( $\beta(x) = \beta_0\sqrt{x}$ ) багато-шарової системи.

хова крива) шарах. Видно, що дана область на нижніх шарах є видовженою по коефіцієнту адсорбції та звуженою по силі анізотропії вертикальної дифузії, порівняно із областю для верхніх шарів.

Залежність середнього періоду розташування структур адсорбату від сили анізотропії вертикальної дифузії на верхніх і нижніх шарах наведена на рисунку 1.13. Видно, що на нижніх шарах хвильове число  $\kappa_0$  приймає дещо більші значення. Це означає, що період розташування структур на нижніх шарах в  $r$ -просторі є меншим у порівнянні з верхніми шарами.

## Висновки

За результатами роботи було побудовано математичну модель для моделювання процесів формування та росту структур адсорбату на поверхнях тонких плівок при конденсації в системах плазма-конденсат з урахуванням анізотропії вертикальної дифузії адатомів між шарами багат шарової системи.

Розглянуто випадок однорідної системи та отримано залежності стаціонарних значень концентрації адсорбату від основних керуючих параметрів системи, що зводяться до коефіцієнту адсорбції, енергії взаємодії адсорбату між собою та сили анізотропії вертикальної дифузії адатомів, що зводиться до сили підведеного до підкладки зовнішнього електричного поля в системі плазма-конденсат. Встановлено умови реалізації переходів першого роду в досліджуваній системі та отримано фазові діаграми, що ілюструють зміну області бістабільності. Досліджено динаміку росту концентрації адсорбату в однорідній системі та встановлено вплив основних параметрів на швидкість такого росту.

В рамках лінійного 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 підкладці формуються відокремлені структури адсорбату. Отримано фазові діаграми, що ілюструють відповідні області значень параметрів системи. Встановлено залежності середнього періоду розташування відокремлених структур адсорбату від основних параметрів системи.

Розроблено програмні коди для проведення числового моделювання процесів формування та росту відокремлених структур адсорбату в системі плазма-конденсат на дво-вимірній ґратці.

Отримані результати можуть бути використані для прогнозування динаміки процесів конденсації адсорбату в системах плазма-конденсат та дозволяють визначити технологічні умови та режими, за яких в системах плазма-конденсат будуть формуватись відокремлені структури адсорбату.

Роботу виконано в строк та в повному обсязі.

### Перелік джерел посилань

1. E. Hirota, H. Sakakima and K. Inomata *Giant Magneto-Resistance Devices* (Springer, Berlin, Heidelberg, New York, Barcelona, Hong Kong, London, Milan, Paris, Tokyo, 2002).
2. Warburton R.J. Optical emission from a charge-tunable quantum ring / [R.J. Warburton, C.Schafflein, D.Haft, et al] // Nature.-2000.- **405**, № 6789.- P.926-9.
3. Shah A. Photovoltaic technology: the case for thin-film solar cells / [A. Shah, P. Torres, R. Tscharnner, et al] // Science.-1999.- **285**, № 5428.- P.692-8.
4. Li-Dong Zhao Ultralow thermal conductivity and high thermoelectric figure of merit in SnSe crystals / [Li-Dong Zhao, Shih-Han Lo, Yongsheng Zhang, et al]// Nature.-2014.- **508**.- P.373-377.
5. Pohl K. Identifying the forces responsible for self-organization of nanostructures at crystal surfaces / [K.Pohl, M.C.Bartelt, J.de la Figuera, et al]// Nature.-1999.- **397**, № 6716.- P.238-241.
6. Mo Y.W. Growth and equilibrium structures in the epitaxy of Si on Si(001) / [Y.W.Mo, B.S.Swartzentruber, R.Kariotis, et al]// Phys.Rev.Lett.-1989.- **63**, № 20-21.- P.2393-2396.
7. Cirlin G.E. Ordering of nanostructures in a Si/Ge<sub>0.3</sub>Si<sub>0.7</sub>/Ge system during molecular beam epitaxy / G.E.Cirlin, V.A.Egorov, L.V.Sokolov, P.Werner// Semiconductors.-2002.- **36**, № 11.- P.1294-1298.
8. Bucher J.P. Transition from One- to Two-Dimensional Growth of Cu on Pd(110) Promoted by Cross-Exchange Migration / [J.P.Bucher, E.Hahn, P.Fernandez, et al]// Europhys.Lett.-1994.- **27**, № 6.- P.473-478.
9. F.Besenbacher, L.Pleth Nielsen, P.T.Sprunger *Chapter 6. Surface alloying in het-eroepitaxial metal-on-metal growth* (Elsevier, 1997).

10. Hildebrand M. Mesoscopic Modeling in the Kinetic Theory of Adsorbates / M.Hildebrand, A.S.Mikhailov// J.Phys.Chem.-1996.- **100**, № 49.- P.19089-19101.
11. Batogkh D. Nucleation kinetics and global coupling in reaction-diffusion systems / D.Batogkh, M.Hildebrand, F.Krischer, A.Mikhailov // Phys.Rep.-1997.- **288**.- P.435-456.
12. K.Binder, in: P.Haasen (Eds.) *Material Science and Technology: Phase Transformations in Materials, Vol.5* ( VCH: Weinham, 1990).
13. Tran-Cong Q. Reaction-Induced Ordering Phenomena in Binary Polymer Mixtures/ Q.Tran-Cong, A.Harada// Phys.Rev.Lett.- 1996.- **76**, № 7.- P.1162-1165.
14. Heldebrand M. Traveling Nanoscale Structures in Reactive Adsorbates with Attractive Lateral Interactions /M.Heldebrand, A.S.Mikhailov, G.Ertl// Phys.Rev.Lett.-1998.- **81**, № 12.- P.2602-2605 (1998).
15. Heldebrand M. Nonequilibrium stationary microstructures in surface chemical reactions /M.Heldebrand, A.S.Mikhailov, G.Ertl// Phys.Rev.E.-1998.- **58**, № 5.- P.5483-5493.
16. Mikhailov A. Pattern formation by adsorbates with attractive lateral interactions / A.Mikhailov, G.Ertl// Chem.Phys.Lett.-1994.- **238**, № 1-3.- P.104-109.
17. Brune H. Microscopic view of epitaxial metal growth: nucleation and aggregation /H.Brune// Surf.Sci.Reports.-1998.- **31**, № 4-6.- P.121-229.
18. Caffisch R.E. Kinetic model for a step edge in epitaxial growth / [R.E.Caffisch, W.E, M.F.Gyure, et al]// Phys.Rev.E.-1999.- **59**, № 6.- P.6879-6887.
19. Wadley H.N.G. Mechanisms, models and methods of vapor deposition / [H.N.G.Wadley, X.Zhou, R.A.Johnson, et al]// Progress in Material Science.- 2001.- **46**, № 3-4.- P329-377.

20. K.S.Sree Harsha, *Principles of Physical Vapor Deposition of Thin Films* (Elsevier, 2006).
21. Perotto G. Nanopatterning of silica with mask-assisted ion implantation / G. Perotto, V. Bello, T. Cesca, G. Mattei, P. Mazzoldi, G. Pellegrini, C. Scian // Nucl.Instr.Meth.Phys.Res.B. - 2010. -Vol. 268. - P. 3211-3214.
22. Bernas H. Can ion beams control nanostructures in insulators / H. Bernas // Nucl.Instr.Meth.Phys.Res.B.-2010.- Vol.-268. - P. 3171–3177.
23. Kharchenko V. O. Nanosize pattern formation in overdamped stochastic reaction-diffusion systems with interacting adsorbate / V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko // Phys.Rev.E.- 2012.- Vol. 86. - P.- 041143-041154.
24. Kharchenko V. O. Properties of nano-islands formation in nonequilibrium reaction-diffusion systems with memory effects / V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, S. V. Kokhan, I. V. Vernyhora, V. V. Yanovsky // Phys.Scr.- 2012.-Vol. 86.-P.- 055401.
25. Kharchenko V. O. Statistical properties of nanosized clusters on a surface in overdamped stochastic reaction-Cattaneo systems / V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, A. V. Dvornichenko // Surf.Sci.-2014. -Vol. 630. - P. - 158-167.
26. Kharchenko V. O. Thermal effects in nano-sized adsorbate islands growth processes at vapor deposition / V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, A. V.Dvornichenko // Physica A. - 2016.- Vol. 444. - P. - 689-699.
27. Perekrestov V. I. Self-organization of quasi-equilibrium steady-state condensation in accumulative ion-plasma devices / V. I. Perekrestov, A. I. Olemskoi, Yu. O. Kosminska, A. A. Mokrenko // Physics Letters A. - 2009.- Vol. 373.- P. - 3386-3392.
28. Kosminska Y. A. Self-assembly of amorphous silicon island systems due to field-induced selectivity / Y. A. Kosminska, A. A. Mokrenko, V. I. Perekrestov // Tech Phys Lett. - 2011.- Vol.37. - P. - 538-541.

29. Kharchenko Vasyl O. Nano-sized Adsorbate Structure Formation in Anisotropic Multilayer System/ Vasyl O. Kharchenko, Dmitrii O. Kharchenko, Vladimir V. Yanovsky // *Nanoscale Research Letters*. - 2017. - Vol. № 12. P.- 337-345.
30. Харченко В. О. Формування нанорозмірних структур адсорбату у процесах конденсації з газової фази / В. О. Харченко, Д. О. Харченко, С. В. Кохан, В. В. Яновський, А. В. Дворниченко // *Наносистеми, наноматеріали, нанотехнології*. - 2016.- Vol.14. - P. 47 - 121.
31. Kharchenko V. O. Statistical properties of abnormal nano-sized adsorbate islands growth in a model of adsorptive multilayer system / V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko // *Surface Science*. -2015. - Vol. 637 -638. - P. 90-100.
32. Zambelli T. Diffusion and atomic hopping of N atoms on Ru (0001) studied by scanning tunneling microscopy / T. Zambelli, J. Trost, J. Winterlin, G. Ertl // *Phys.Rev.Lett*. - 1996. - Vol. 79. - P. 795-799.
33. Gorodetskii V. Coupling between adjacent crystal planes in heterogeneous catalysis by propagating reaction–diffusion waves / V. Gorodetskii, J. Lauterbach, H. Rotermund, J. Block, G.Ertl // *Nature*. -1994. -Vol. 370. - P. 276-279.
34. Zepenfeld P. Size relation for surface systems with long-range interactions / P. Zepenfeld, M. Krzyzowski, C. Romainczyk, G. Gomsa, M. Lagally // *Phys.Rev.Lett*. - 1994. - Vol. 72. - P. 2737-2740.
35. Marchenko V.I. Domain structure in oxygen on a Cu(110) surface / V.I. Marchenko // *JETP Lett.*- 1992. -Vol. 55. - P. 73- 76.
36. Vanderbilt D. Phase segregation and work-function variations on metal surfaces: spontaneous formation of periodic domain structures / D. Vanderbilt // *Surf.Sci*. - 1992. - Vol. 268. - P. 300-304.

37. Zhiglinskiy A. G. Mass Transfer at an Interaction of Plasma with Surface./Zhiglinskiy A. G. , Kuchinskiy V. V. // Energoizdat: Moscow. - 1991.- P.- 205.
38. Walgraef D. Nanostructure evolution during thin film deposition / D. Walgraef // Physica E. - 2003. - Vol. 18. - P. 393–402.
39. Walgraef D. Reaction-diffusion approach to nanostructure formation and texture evolution in adsorbed monoatomic layers/ D. Walgraef // Int.Journal of Quantum Chemistry Int J Quantum Chem. - 2004. - Vol. 98. P. 248–13.
40. Casal S. B. Phase transitions and adsorption isotherm in multilayer adsorbates with lateral interactions / S. B. Casal, H. S. Wio, S. Mangioni // Physica A. - 2002. - Vol. 311. - P. 443–15.