

СТРОЕНИЕ И СВОЙСТВА НАНОРАЗМЕРНЫХ И МЕЗОСКОПИЧЕСКИХ МАТЕРИАЛОВ

PACS numbers: 05.40.-a, 65.80.-g, 68.43.-h, 81.16.Rf, 82.40.Ck, 82.40.Np, 89.75.Kd

Формування нанорозмірних структур адсорбату в процесах конденсації з газової фази з урахуванням температурних ефектів

В. О. Харченко, В. В. Яновський*, А. В. Дворниченко**

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

**Інститут монокристалів НАН України,
просп. Науки, 60,
61001 Харків, Україна*

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

Вивчається вплив теплопровідності поверхні на процес формування островів адсорбату при конденсації з газової фази в реакційно-дифузійних системах. Враховуються нерівноважні хемічні реакції, відповідальні за формування стійких димерів, та вважається, що температура поверхні може локально змінюватися при перебігу процесів адсорбції/десорбції. Для однорідної системи одержано умови реалізації фазових переходів першого роду типу газ–тверде тіло. В межах лінійної аналізи на стійкість розраховано фазову діаграму, що ілюструє область, де можливі просторові нестійкості. За допомогою числового моделювання показано, що теплопровідність впливає на перехідні процеси формування структур адсорбату. Встановлено, що середній розмір островів адсорбату зростає з часом за

Corresponding author: Vasyly Olegovych Kharchenko
E-mail: vasilii@ipfcentr.sumy.ua

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

**Institute for Single Crystals, N.A.S. of Ukraine, 60 Nauky Ave., 61178 Kharkiv, Ukraine*

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

Please cite this article as: V. O. Kharchenko, V. V. Yanovsky, and A. V. Dvornichenko, Formation of Nanosize Structures of Adsorbate in Processes of Condensation of a Gas Phase with Due Regard for Temperature Effects, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **38**, No. 2: 205–227 (2016) (in Ukrainian), DOI: 10.15407/mfint.38.02.0205.

степеневим законом, і показник росту збільшується з коефіцієнтом теплопровідності. Встановлено розподіл островів адсорбату за розмірами в стаціонарному режимі та виявлено, що збільшення теплопровідності поверхні приводить до трансформації розподілу від логнормального до Гауссового. Показано, що середній розмір стаціонарних структур адсорбату характеризується нанометровим масштабом.

Ключові слова: конденсація, наноструктури адсорбату, реакційно-дифузійні системи, температурні ефекти.

Исследуется влияние теплопроводности поверхности на процесс формирования островов адсорбата при конденсации из газовой фазы в реакционно-диффузионных системах. Учитываются неравновесные химические реакции, отвечающие за формирование устойчивых димеров, и считается, что температура поверхности может локально изменяться при протекании процессов адсорбции/десорбции. Для однородной системы получены условия реализации фазовых переходов первого рода типа газ–твёрдое тело. В рамках линейного анализа на устойчивость получена фазовая диаграмма, иллюстрирующая область, где возможны пространственные неустойчивости. При помощи численного моделирования показано, что теплопроводность влияет на переходные процессы формирования структур адсорбата. Установлено, что средний размер островов адсорбата растёт со временем по степенному закону, и показатель роста увеличивается с коэффициентом теплопроводности. Установлено распределение островов адсорбата по размерам в стационарном режиме и показано, что увеличение теплопроводности поверхности приводит к трансформации распределения от логнормального к гауссовскому. Показано, что средний размер стационарных структур адсорбата характеризуется нанометровым масштабом.

Ключевые слова: конденсация, наноструктуры адсорбата, реакционно-диффузионные системы, температурные эффекты.

An influence of thermal conductivity of a surface on adsorbate-islands' formation at vapour deposition in the reaction–diffusion systems is studied. Non-equilibrium chemical reactions, which are responsible for stable-dimers' formation, are taken into account with assumption that the surface temperature can be changed locally due to adsorption/desorption processes. For homogeneous system, the conditions for first-order phase transitions of the gas–solid type are found. Within the framework of the linear stability analysis, the phase diagram illustrating a region with spatial instabilities is calculated. The numerical simulations show that thermal conductivity governs transient dynamics of adsorbate-structures' formation. The mean size of adsorbate islands evolves in time according to power law, and the growth power exponentially increases with thermal conductivity. The distributions of adsorbate islands over sizes are calculated in stationary limit, and it is found that an increase in thermal conductivity of the surface leads to transformation of distribution from Lognormal form to Gaussian one. As shown, the mean size of stationary adsorbate islands is characterized by nanometre scale.

Key words: vapour deposition, nanosize adsorbate structures, reaction-diffusion systems, thermal effects.

(Отримано 20 жовтня 2015 р.)

1. ВСТУП

Упродовж останніх декількох десятиліть нанofізика набуває все більшої ваги у сучасній науці. Це пов'язано, насамперед, з використанням наноструктурованих тонких плівок у сучасній нано- та оптоелектроніці. Добре відомим є те, що використання різних матеріалів (металів, напівпровідників) уможливорює вирощувати наноструктури різного типу та розміру, а саме, рівновісні наноточки (nanodots), рівновісні нанодірки (nanoholes) та видовжені структури (stripes). Такі наноструктуровані тонкі плівки набувають все більш широкого застосування в сучасних приладах нано- та мікроелектроніки. У зв'язку з цим постає актуальне питання щодо з'ясування ролі основних механізмів процесу структурування тонких плівок, формування типу та розміру наноструктур, що уможливить керувати характерними параметрами створених стаціонарних структур.

Раніше було показано, що наноструктуровані тонкі плівки різних матеріалів характеризуються винятковою функціональністю, зокрема гігантським магнетоопором [1], контрольованою оптичною емісією [2], високою ефективністю фотоелектричних перетворень [3], наднизькою теплопровідністю [4]. Ці унікальні властивості уможливили використання таких матеріалів у магнеторезистивних датчиках, пристроях пам'яті, лазерах на квантових точках і детекторах.

На сьогодні існує низка методів, що використовуються для виготовлення наноструктурованих тонких плівок. Серед них хемічне осадження з газової фази (осадження за умов атмосферного тиску, низького тиску або високовакуумне осадження); фізичне осадження (використання електронного пучка або імпульсного лазера); гомо- та гетероепітаксія. Використовуючи різні методи для осадження, можна ефективно залучати різні механізми вирощування нанорозмірного острова (адсорбція/десорбція, дифузія, взаємодія адатомів), що веде до утворення різних типів поверхневих структур: періодичного розташування вакансійних структур [5], витягнутих островів адсорбату в напівпровідниках Ge/Si і Si/Si [6, 7] і металах Cu/Pd, Ag/Cu [8, 9]. Упродовж останніх десятиліть рівновісні та видовжені нанорозмірні структури спостерігалися в реальних експериментах та при числовому моделюванні при осадженні з газової фази та з використанням електронного пучка [10–13], йонно-променевого розпорошенні [14–19], імпульсному лазерному опроміненні [20–22], молекулярно-променевої епітаксії [23–29].

З теоретичної точки зору, при описі процесу осадження з газової фази використовуються моделі, що належать до класу реакційно-

дифузійних систем. Ці системи відіграють важливу роль у вивченні просторово-часової поведінки нерівноважних систем. Зазвичай такі моделі містять основні внески, пов'язані з локальною динамікою (хемічні реакції типу народження/смерті) і масовим транспортом. Такі експериментальні методи, як польова йонна мікроскопія та сканувальна тунельна мікроскопія, надають можливість спостерігати хемічні реакції на металевих поверхнях на атомному рівні. Відомо, що адсорбція та десорбція являють собою рівноважні реакції, які пов'язані з обміном частинками між підкладкою і великим газовим резервуаром. Такі реакції сприяють формуванню перехідних структур на ранніх стадіях еволюції системи [30]. Однак, із плином часу ці структури дисоціюють, і в стаціонарному режимі адсорбат рівномірним чином розподілиться на підкладці. Зовсім по іншому протікає формування структур за наявності нерівноважних хемічних реакцій [31–36]. В цьому випадку з часом на підкладці можуть виникати стаціонарні нерівноважні структури адсорбату. Такі реакції, зазвичай, пов'язані з асоціативною десорбцією або з утворенням стабільних комплексів [37, 38].

В роботі [39] для опису процесів формування структур адсорбату при конденсації з газової фази автори використовували модель реакційно-дифузійного типу з урахуванням нерівноважних хемічних реакцій, що відповідають утворенню стійких димерів. Було показано, що за умов малого але кінцевого часу релаксації потоку адсорбату в системі реалізується коливальна поведінка статистичних моментів та лінійного розміру острова адсорбату. Вплив внутрішнього мультиплікативного шуму на характер структурування тонкої плівки в такій системі обговорювався в роботі [40], де було показано, що за допомогою флюктуацій, які задовольняють флюктуаційно-дисипативній теоремі, можна керувати топологією кластерів адсорбату та їх лінійними розмірами.

При вивченні процесів формування нанорозмірних структур шляхом конденсації з газової фази зазвичай вважається, що температура поверхні залишається незмінною. Такий підхід є певною ідеалізацією, бо означає, що температура поверхні релаксує нескінченно швидко до температури бані, а отже, жодні локальні зміни температури в процесах адсорбції/десорбції є неможливими. З фізичної точки зору, коли атом з газової фази досягає підкладки та стає адатомом, температура поверхні локально зростає. З іншого боку, якщо адатом десорбується з поверхні, то температура локально зменшується. Отже, конкуренція таких процесів, навіть на мезоскопічному рівні, приводить до локальної зміни температури поверхні [27]. Слід зазначити, що в задачах агрегації м'якої матерії і в галузі біомедицини невеликі зміни температури можуть мати важливий вплив на динаміку утворення кристалів. Було показано, що середня швидкість росту кристалу білка залежить від локальних

змін температури [41].

У даній роботі нами досліджено вплив локальної зміни температури поверхні на процеси формування структур адсорбату при конденсації з газової фази з урахуванням нерівноважних реакцій, що відповідають за формування стійких димерів. Показано, що в однорідній системі реалізуються переходи першого роду. В межах лінійної аналізи системи на стійкість одержано фазову діаграму, що обмежує область параметрів системи, коли процес конденсації супроводжується формуванням стійких відокремлених структур адсорбату. Динаміку та основні статистичні характеристики буде досліджено в межах числового моделювання. Встановлено вплив коефіцієнта теплопровідності на характер структуроутворення, закон росту середнього розміру острова адсорбату та стаціонарний розподіл таких структур за розмірами.

Роботу побудовано наступним чином. У другому розділі формулюється модель досліджуваної системи, що враховує нерівноважні хемічні реакції та локальні зміни поля температури. Третій розділ присвячено лінійній аналізі на стійкість даного моделю. Основні результати числового моделювання процесу росту островів адсорбату представлено в четвертому розділі. У п'ятому розділі зібрано основні висновки роботи.

2. МОДЕЛЬ

Для дослідження процесу формування наноостровів адсорбату при конденсації з газової фази будемо розглядати одношаровий модель. У такому разі всю поверхню розіб'ємо на комірки, в кожній з яких концентрація адсорбату $x(\mathbf{r}, t)$ набуває значень в інтервалі $[0, 1]$; t — часова змінна, \mathbf{r} — просторова координата. Згідно з припущеннями та результатами попередніх досліджень, будемо враховувати наступні процеси, що протікають при конденсації з газової фази: 1) адсорбція — частинки одного сорту (атоми чи молекули) можуть бути адсорбовані підкладкою та стати адатомами; 2) десорбція — адатоми з певною ймовірністю можуть десорбувати в газову фазу; 3) адатоми можуть взаємодіяти, утворюючи скупчення адатомів (структури); 4) адатоми можуть дифундувати вздовж підкладки [32–36, 42–44]; 5) адатоми можуть формувати стійкі димери на підкладці [39, 40, 45]. Такі процеси відповідають окремому випадку нерівноважних квазіхемічних реакцій. У такому разі ми маємо справу з реакційно-дифузійною системою, динаміка якої визначається еволюційним рівнянням щодо поля концентрації адсорбату в стандартному вигляді:

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

де перший доданок відповідає за квазіхемічні реакції та визначає процеси адсорбції/десорбції, а другий доданок пов'язаний з повним потоком адсорбату \mathbf{J} .

Відомо, що процеси адсорбції характеризуються відповідною швидкістю адсорбції k_a та тиском газової фази P . До того ж, оскільки ми розглядаємо одношаровий модель, то необхідно мати на увазі, що адсорбція можлива лише на місця, вільні від адсорбату. Отже, процеси адсорбції обумовлені внеском $k_a P(1-x)$. Процеси десорбції характеризуються швидкістю $k_d = k_{d0} \exp(U(\mathbf{r})/T)$, де k_{d0} — швидкість десорбції незваємодійних частинок (атомів/молекул), а $U(\mathbf{r})$ — потенціал взаємодії адсорбату на підкладці. Таким чином, для опису процесів десорбції до реакційної складової рівняння (1) вводиться доданок $-k_d x$. Як було вказано раніше, адсорбція та десорбція є рівноважними реакціями, що визначають обмін частинками між підкладкою та великим газовим резервуаром. У такій замкненій системі можливі лише просторові збурення на малих часових інтервалах, що призводить до реалізації нестійких перехідних структур. За великих часових масштабів дана система прямуватиме до термодинамічної рівноваги, коли вся підкладка буде рівномірно покрита адсорбатом. Наявність нерівноважних квазіхемічних реакцій таких, наприклад, як формування стійких димерів на підкладці, якісно змінює еволюції структур на підкладці [39, 40, 45]. За наявності таких процесів до реакційної складової рівняння (1) входить доданок $-k_r x^2$, де k_r — відповідна швидкість таких реакцій. Таким чином, загальний вигляд реакційної складової рівняння (1) має вигляд: $R(x) = k_a P(1-x) - k_{d0} x \exp(U(\mathbf{r})/T) - k_r x^2$. Якщо коефіцієнт k_r набуває нульового значення, ми повертаємося до звичайного випадку з відсутністю нерівноважних квазіхемічних реакцій.

Побудуємо загальний стаціонарний потік адсорбату \mathbf{J} , що задає масовий транспорт. Цей потік визначається сумою стандартного дифузійного потоку $-D\nabla x$ і потоку адсорбату $-Dx(1-x)\nabla(U/T)$, де D — коефіцієнт дифузії, множник $x(1-x)$ означає, що потік адсорбату можливий лише на $(1-x)$ вільних місць. Шляхом уведення мобільності $M(x) = x(1-x)$, згідно з Онзаґеровою лінійною теорією, повний потік може бути переписаний у загальному вигляді $\mathbf{J} = -DM(x)\nabla(\mu(x, T)/T)$, де μ — хемічний потенціал, зв'язаний з вільною енергією Φ стандартним чином $\mu = \delta\Phi/\delta x$. Функціонал вільної енергії має наступний вигляд:

$$\begin{aligned} \Phi &= \\ &= \int d\mathbf{r} \left\{ T \left[x(\mathbf{r}) \ln x(\mathbf{r}) + (1-x(\mathbf{r})) \ln(1-x(\mathbf{r})) \right] \right\} - \int d\mathbf{r} \int d\mathbf{r}' x(\mathbf{r}) u(\mathbf{r}-\mathbf{r}') x(\mathbf{r}'). \end{aligned}$$

Тут $u(\mathbf{r})$ задає бінарний потенціал притягання для двох адсорбованих атомів, що розділені відстанню r . Даний потенціал є симетричним, тобто $\int d\mathbf{r} r^{2n+1} u(\mathbf{r}) = 0$, $n = 1, 2, \dots, \infty$. Наслідуючи роботу [36], в

якості апроксимації даного потенціалу притягання виберемо Гауссову форму:

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

де ε — енергія взаємодії, r_0 — радіус взаємодії. Припустимо, що концентрація адсорбату x слабо змінюється на відстані r_0 , тоді можна використати апроксимацію $\int d\mathbf{r}' u(\mathbf{r} - \mathbf{r}') x(\mathbf{r}') \approx \int d\mathbf{r}' u(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \times \times \sum_n \frac{(\mathbf{r} - \mathbf{r}')^n}{n!} \nabla^n x(\mathbf{r})$. У даному ряді залишаємо лише три вагомих члени:

$$\begin{aligned} \int d\mathbf{r}' u(\mathbf{r} - \mathbf{r}') x(\mathbf{r}') &\approx \\ &\approx \int u(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \left[x(\mathbf{r}) + \frac{1}{2} (\mathbf{r} - \mathbf{r}')^2 \nabla_{\mathbf{r}}^2 x(\mathbf{r}) + \frac{1}{4!} (\mathbf{r} - \mathbf{r}')^4 \nabla_{\mathbf{r}}^4 x(\mathbf{r}) \right] d\mathbf{r}'. \end{aligned} \quad (3)$$

Підставляючи рівняння (2) в рівняння (3), одержуємо:

$$\int d\mathbf{r}' u(\mathbf{r} - \mathbf{r}') x(\mathbf{r}') \approx \varepsilon x(\mathbf{r}) + \varepsilon (1 + r_0^2 \nabla^2)^2 x(\mathbf{r}).$$

Таким чином, функціонал вільної енергії можна записати в наступному вигляді:

$$\Phi = \int d\mathbf{r} \left\{ -\frac{\varepsilon}{2} x^2 + T [x \ln x + (1 - x) \ln(1 - x)] - \frac{\varepsilon}{2} x (1 + r_0^2 \nabla^2)^2 x \right\}.$$

До того ж, вважаючи, що хемічний потенціал μ є функцією концентрації та температури, для повного потоку адсорбату маємо:

$$\mathbf{J} = -D \frac{M(x)}{T} \left(\left. \frac{\partial \mu}{\partial x} \right|_T \nabla x + \left. \frac{\partial \mu}{\partial T} \right|_x \nabla T - \frac{\mu}{T} \nabla T \right).$$

Як було вказано раніше, температура поверхні може локально змінюватись у процесах адсорбції/десорбції: температура локально збільшується, коли атом з газової фази досягає підкладки і стає адатомом; процеси десорбції приводять до локального охолодження поверхні. Виходячи з цього, можна записати рівняння еволюції поля температури поверхні:

$$C\rho \frac{\partial T}{\partial t} = -\frac{\gamma_0}{h} (T - T_0) + \chi \Delta T + \eta \frac{\partial x}{\partial t}. \quad (4)$$

Тут C — питома теплоємність, ρ — густина, h — товщина плівки, γ_0 — коефіцієнт передачі тепла, T_0 — температура теплової бані (се-

редовища), χ — коефіцієнт теплопровідності. Перший член у рівнянні (4) визначає релаксацію температури поверхні до температури теплової бані T_0 ; другий доданок відповідає за дифузійні процеси; останній член, що характеризується коефіцієнтом η , визначає інтенсивність локальної зміни температури при зміні концентрації адсорбату в процесах адсорбції/десорбції.

Для дослідження такого моделю далі зручно перейти до безрозмірних змінних. Для цього будемо вимірювати час у величинах k_d , уведемо дифузійну довжину $L_d = (D/k_d)^{1/2}$ та безрозмірні константи $\theta = T/T_0$, $\varepsilon' = \varepsilon/T_0$, $\alpha = k_a P/k_d$, $\beta = k_r/k_d$, $\nu = k_d C \rho h/\gamma_0$, $\chi' = \chi h/\gamma_0$, $\eta' = \eta h/\gamma_0 T_0$. У такому разі, опускаючи штрихи, реакційна складова рівняння (1) набуває вигляду

$$R(x, \theta) = \alpha(1 - x - \beta x^2) - x \exp(-2\varepsilon x/\theta) - \beta x^2, \quad (5)$$

де доданок $-\alpha\beta x^2$ враховує, що димери, які формуються з ймовірністю β , є стійкими. Це означає, що атом з газової фази може адсорбуватися на місця, вільні від адатомів та їх комплексів (димерів). Водночас, загальний безрозмірний потік адсорбату має вигляд:

$$\mathbf{J} = -D\nabla x + D \frac{\varepsilon}{\theta} M(x) \left[\nabla x + \nabla L_{SH} x - \frac{x}{\theta} \nabla \theta \right], \quad (6)$$

де використано оператор Світа–Хоенберга $L_{SH} = (1 + r_0^2 \nabla^2)^2$ [46]. Таким чином, загальна система двох диференціальних рівнянь має наступний вигляд:

$$\begin{cases} \partial_t x = R(c, \theta) - L_d^2 \nabla \cdot \mathbf{J} + \xi(\mathbf{r}, t), \\ \nu \partial_t \theta = (1 - \theta) + \chi \Delta \theta + \eta \partial_t x. \end{cases} \quad (7)$$

Система рівнянь (7) є узагальненим моделю для опису формування нанорозмірних структур адсорбату при конденсації з газової фази, що враховує локальні зміни температури поверхні в ході адсорбції та десорбції. Оскільки опис системи виконується на мезоскопічному рівні шляхом дослідження концентрації адсорбату, то необхідним є врахування ефектів перерозподілу адатомів на мікроскопічному рівні. У зв'язку з цим, для забезпечення статистичного опису динаміки системи до рівняння для еволюції концентрації адсорбату в системі (7) введено стохастичне джерело $\xi(\mathbf{r}, t)$. У найпростішому випадку флюктуації вибираються у вигляді білого Гауссового шуму з наступними властивостями: $\langle \xi(\mathbf{r}, t) \rangle = 0$, $\langle \xi(\mathbf{r}, t) \xi(\mathbf{r}', t') \rangle = \sigma^2 \delta(t - t') \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$, де σ^2 — інтенсивність флюктуацій.

У наступному розділі буде досліджено однорідну систему та виконано лінійну аналізу на стійкість неоднорідної системи для визначення області основних параметрів, що зводяться до коефіцієнта адсорбції α , енергії взаємодії адсорбату ε та параметра нерівно-

важних реакцій β , за яких можливим є утворення стійких структур адсорбату.

3. ЛІНІЙНА АНАЛІЗА НА СТІЙКІСТЬ

Спочатку розглянемо однорідну детерміністичну систему, поклавши $\sigma^2 = 0$. Оскільки ми маємо справу з процесами конденсації з газової фази, то в такій системі можливими є фазові переходи першого роду типу газ–тверде тіло. Для встановлення умов протікання таких переходів знайдемо стаціонарні стани системи (7), нехтуючи просторовими кореляціями. Легко бачити, що стаціонарне значення температури поверхні $\theta_{st} = 1$. До того ж стаціонарне значення концентрації адсорбату x_{st} можна одержати як розв’язок рівняння $R(x_{st})|_{\theta=1} = 0$.

На рисунках 1, а і б наведено залежності стаціонарного значення концентрації адсорбату x_{st} від коефіцієнта адсорбції α при різних значеннях енергії взаємодії ε та від енергії взаємодії адсорбату за різних значень коефіцієнта адсорбції відповідно. З рисунків видно, що за умови невеликих α (малий тиск) та підвищених ε (низька температура T_0) в системі реалізуються фазові переходи першого роду (див. суцільні криві на рис. 1, а, б). Фазову діаграму $\alpha(\varepsilon)$, що ілюструє область реалізації переходів першого роду, представлено на рис. 1, в при різних значеннях коефіцієнта нерівноважних реакцій β . З рисунка видно, що збільшення ймовірності перебігу нерівноважних реакцій суттєво зменшує область значень коефіцієнта адсорбції та енергії взаємодії адсорбату, коли в системі можливі переходи першого роду. До того ж ліворуч від бістабільної області концентрація адсорбату є малою (розбавлена фаза), тоді як праворуч від цієї області адсорбат майже повністю покриває підкладку (щільна фаза).

Тепер перейдемо до виявлення умов нестійкості однорідного розподілу концентрації адсорбату. Лінеаризуючи усереднену систему рівнянь (7) в околі однорідних стаціонарних значень стандартним методом [47], знаходимо дисперсійне рівняння:

$$\lambda = \lambda_0 - \kappa^2 \left\{ 1 - \varepsilon M(x_{st}) \left[1 + (1 - \rho_0^2 \kappa^2)^2 \right] + \varepsilon M(x_{st}) \right\},$$

де $\kappa = \kappa L_d$ — безрозмірний хвильовий вектор, а $\lambda_0 = \partial_x R(x, \theta = 1)|_{x=x_{st}}$

та введено безрозмірний просторовий масштаб $\rho_0 \equiv r_0/L_d$. Згідно зі стандартною теорією, маємо, що у випадку $\lambda(\kappa) < 0$ всі відхилення від однорідного стану з часом експоненційно зменшуються, і адсорбат однорідно заповнює підкладку. У випадку, коли $\lambda(\kappa) > 0$ при $\kappa \in [0, \kappa_c)$ та $\lambda(\kappa) < 0$ при $\kappa \in (\kappa_c, \infty)$ за умови, що $\lambda(0)$ набуває мак-

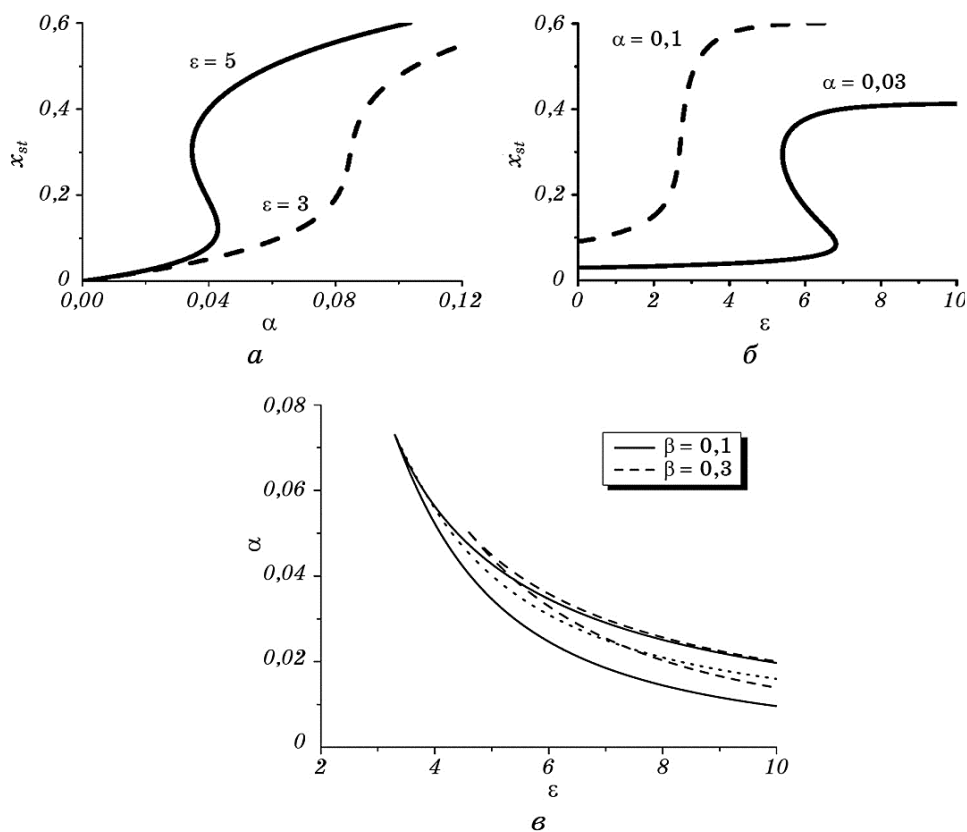


Рис. 1. Біфуркаційні діаграми $x_{st}(\alpha)$ та $x_{st}(\epsilon)$ представлено на рисунках (а) та (б). Фазова діаграма однорідної системи при різних значеннях ймовірності формування стійких димерів (ϵ). Всередині обмеженої області система є бістабільною.

Fig. 1. Bifurcation diagrams $x_{st}(\alpha)$ (a) and $x_{st}(\epsilon)$ (б). Phase diagram for homogeneous system at different values of non-equilibrium reaction rate (ϵ). The system is bistable inside the bounded region.

симального значення, буде реалізовуватися 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 $\kappa = \kappa_0$: $\kappa_1 < \kappa_0 < \kappa_2$, який визначатиме максимальне значення показника стійкості $\lambda(\kappa)$.

На рисунку 2, а наведено фазову діаграму $\alpha(\epsilon)$ за різних значень ймовірності нерівноважних реакцій β , що обмежує область параметрів системи (область А), коли в ході конденсації з газової фази будуть формуватися відокремлені структури адсорбату на підкладці. Типову залежність показника стійкості $\lambda(\kappa)$ в області А наведено

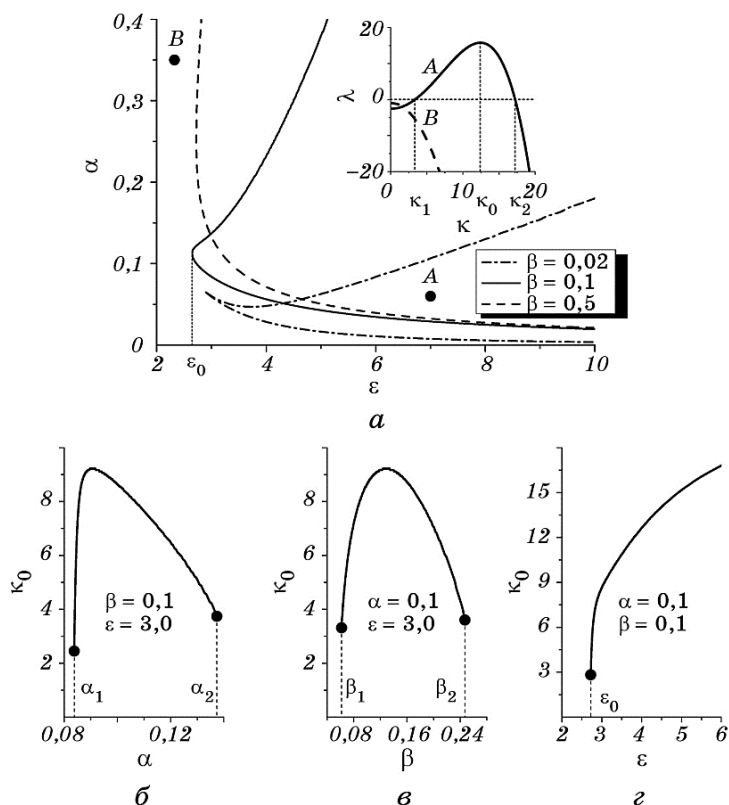


Рис. 2. Фазова діаграма стійкості системи до неоднорідних збурень (а). При значеннях параметрів з області А на поверхні будуть формуватися відокремлені стійкі структури адсорбату. В області В поверхня буде однорідною. Залежності показника стійкості від хвильового числа в областях А та В подано на вставці. Залежності періоду структур від параметрів системи подано на рисунках б–д.

Fig. 2. Phase diagram for the system stability to inhomogeneous perturbations (a). At values of system parameters inside the region A, stable adsorbate structures will be formed on a surface. Inside region B, the surface will be characterized by homogeneous coverage. Dependences of stability exponent on the wave numbers inside the regions A and B are shown in insert. Dependences of period of structures versus main system parameters are shown in Figs. б–д.

на вставці до рис. 2, а суцільною кривою. Поза обмеженої області (область В) маємо однорідний розподіл адсорбату без структур; показник стійкості є негативним при всіх значеннях хвильового числа κ (див. штрихову криву на вставці до рис. 2, а).

Варто відмітити, що у випадку $\beta = 0$ маємо $\lambda(\kappa) < 0$ при всіх значеннях хвильового числа κ незалежно від α та ε . Збільшення β при-

водить до розширення області A . За помірних значень коефіцієнта нерівноважних реакцій область просторової нестійкості обмежена мінімальним значенням енергії взаємодії адсорбату ε_0 . Таким чином, при фіксованому $\varepsilon > \varepsilon_0$ збільшення коефіцієнта адсорбції α приводить до наступних перетворень у морфології поверхні (див. суцільну криву на рис. 2, *a* при $\beta = 0,1$): 1) при малих значеннях коефіцієнта адсорбції (нижче суцільної кривої) маємо однорідний розподіл адсорбату на підкладці з малою концентрацією; 2) при значеннях α з області A в ході конденсації адатоми за рахунок взаємодії формують відокремлені кластери на підкладці; при великих значеннях коефіцієнта адсорбції (вище суцільної кривої) відбувається процес напорошення, коли адсорбат, розподіляючись рівномірно, майже повністю покриває підкладку.

Період просторових збурень k_0 в області A суттєво залежить від основних параметрів системи, що показано на рис. 2, *b-g*. Так, при фіксованих β та ε збільшення α приводить до немонотонної залежності періоду структур k_0 (див. рис. 2, *b*): починаючи зі значення α_1 (нижня границя області A), він зростає, досягає максимального значення та потім спадає. Коли α стає більшим за α_2 (верхня границя області A), структури адсорбату внаслідок взаємодії формують один перколяційний кластер. Аналогічна залежність періоду структур спостерігається при зміні β та фіксованих значеннях ε та α (див. рис. 2, *e*). Збільшення енергії взаємодії ε , починаючи з ε_0 , приводить до монотонного збільшення періоду структур при постійних β та α (див. рис. 2, *g*). Таким чином, виявлено умови початкового (лінійного) виникнення неоднорідних стаціонарних структур адсорбату на підкладці.

У наступному розділі ми покажемо результати числового моделювання процесу формування нанорозмірних структур адсорбату з врахуванням нелінійних процесів та дослідимо основні статистичні властивості даних структур.

4. ЧИСЛОВІ СИМУЛЯЦІЇ

Для дослідження динаміки росту островів адсорбату в даному розділі будемо використовувати метод числових симуляцій. Для цього будемо чисельно розв'язувати систему рівнянь (7) на двовимірній ґратниці $L \times L$ з лінійним розміром $L = 256\Delta y$ та періодичними крайовими умовами. Моделювання будемо виконувати на ґратниці з гексагональною симетрією, що характеризується трьома хвильовими векторами з кутом $2\pi/3$ між ними. У такому разі стандартне представлення просторових операторів має бути узагальнене на випадок шести найближчих сусідів на розрахунковій ґратниці, і взаємодія адсорбату відбуватиметься в напрямках указаних трьох векторів. Детальну аналізу зміни типу та розміру структур при варію-

ванні основних параметрів системи у випадку незмінної температури поверхні було виконано раніше в роботах [39, 45]. У даній роботі ми сконцентруємо нашу увагу на дослідженні впливу зміни коефіцієнта теплопровідності χ на динаміку та статистичні властивості структур адсорбату. При виконанні числових симуляцій покладемо $\alpha = 0,1$, $\varepsilon = 3,0$, $\beta = 0,1$, $\sigma^2 = 0,1$, $\nu = 0,1$ та $\eta = 0,1$. Інтегрування системи рівнянь (7) будемо виконувати з просторовим кроком $\Delta y = 0,5$ та кроком за часом $\Delta t = 0,00025$. Одночасно радіус взаємодії адсорбату виберемо рівним $r_0 = 0,25$ та розглядатимемо випадок $L_d = 40r_0$. Таким чином лінійний розмір системи складає $L = 12,8L_d$. В якості початкових умов для поля концентрації адсорбату $x(\mathbf{r}, t)$ виберемо $\langle x(\mathbf{r}, 0) \rangle = 0$, $\langle [\delta x(\mathbf{r}, 0)]^2 \rangle = 0,1$; для поля температури $\theta(\mathbf{r}, t)$ покладемо $\langle \theta(\mathbf{r}, 0) \rangle = 1,0$, $\langle [\delta \theta(\mathbf{r}, 0)]^2 \rangle = \eta \langle [\delta x(\mathbf{r}, 0)]^2 \rangle$. Типову ілюстрацію динаміки поля концентрації адсорбату представлено на рис. 3.

У ході еволюції системи, починаючи з рівномірного розподілу (див. рис. 3 при $t = 0$), концентрація адсорбату на підкладці зростає (див. рис. 3 при $t = 10$). При досяганні певного пересичення, внаслідок взаємодії адатомів, на підкладці починають формуватися відокремлені острови адсорбату (див. рис. 3 при $t = 20$). При подальшому осадженні ці острови взаємодіють між собою в такий спосіб, що острови з розміром менше певного критичного значення анігілюють, тоді як великі острови продовжують зростати з часом (див. рис. 3 при $t = 100$). У стаціонарному режимі на підкладці формується стійка конфігурація структур адсорбату, середній розмір яких визначається основними параметрами системи, що зводяться до коефіцієнта адсорбції α , енергії взаємодії адсорбату ε та інтенсивності нерівноважних реакцій β [45]. Слід зазначити, що за умови незмінної темпера-

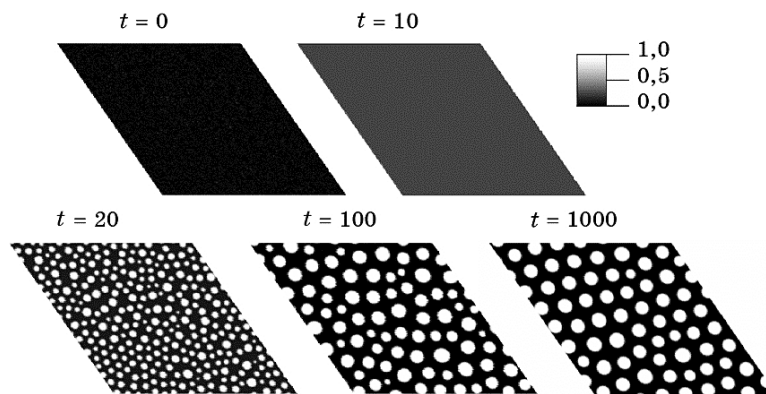


Рис. 3. Типові ілюстрації поля концентрації адсорбату $x(\mathbf{r}, t)$ у різні моменти часу при $\chi = 1,0$.

Fig. 3. Typical snapshots of the coverage field $x(\mathbf{r}, t)$ at $\chi = 1.0$ at different time instants.

тури поверхні результати числового моделювання добре узгоджуються з результатами лінійної аналізи на стійкість [45]. Отже, нелінійність приводить до стабілізації рівня лінійної нестійкості, тобто структури на нелінійній стадії стабілізуються з хвильовими векторами, які відповідають лінійно нестійким умовам.

4.1. Динаміка формування островів адсорбату

Для детального дослідження динаміки формування островів адсорбату будемо аналізувати часову залежність основних статистичних моментів, що зводяться до середньої концентрації адсорбату $\langle x \rangle$, середньої температури поверхні $\langle \theta \rangle$ та відповідних дисперсій $\langle (\delta x)^2 \rangle$ і $\langle (\delta \theta)^2 \rangle$. Залежності еволюції середньої концентрації адсорбату та середньої температури поверхні наведено на рис. 4 для різних значень коефіцієнта теплопровідності. З рисунка 4, а видно, що зміна коефіцієнта теплопровідності не впливає на середнє значення концентрації адсорбату на підкладці. Воно монотонно зростає з часом доки не досягне стаціонарного значення. Середня температура поверхні на ранніх часах еволюції системи монотонно зростає та досягнувши максимального значення починає спадати (див. рис. 4, б). У певний момент часу, коли середня концентрація адсорбату продовжує монотонно зростати, середня температура адсорбату різко зменшується та надалі монотонно спадає до $\theta_{st} = 1$ (див. вставку до рис. 4, б). До того ж зі зменшенням коефіцієнта теплопровідності така стрибкоподібна поведінка середньої температури поверхні спостерігається за більш пізніх часів еволюції системи.

З фізичної точки зору ефект такого різкого зменшення середньої температури пов'язаний з різким збільшенням розсіювання тепла. Природа цього, в свою чергу, можливо пов'язана з виникненням нелінійних структур, що і веде до якісного збільшення розсіювання тепла.

Для більш детальної аналізи даного перехідного режиму розглянемо залежності дисперсій полів концентрації та температури. Варто зазначити, що дисперсія поля концентрації адсорбату може бути асоційована з параметром порядку для процесу формування структур адсорбату. Якщо $\langle [\delta x(t)]^2 \rangle = 0$, то адсорбат рівномірно розподілений за всією підкладкою і структуроутворення є неможливим. Зростання $\langle (\delta x)^2 \rangle$ з часом означає реалізацію процесів упорядкування, що приводить до формування відокремлених структур адсорбату на підкладці. Якщо за великих часових інтервалів величина $\langle (\delta x)^2 \rangle$ набуває постійного ненульового значення, то процеси впорядкування вважаються завершеними, і ми приходимо до стаціонарного режиму еволюції системи. Аналогічним чином можна міркувати щодо перерозподілу поля температури, досліджуючи поведінку $\langle [\delta \theta(t)]^2 \rangle$. Часові залежності дисперсій поля концентрації

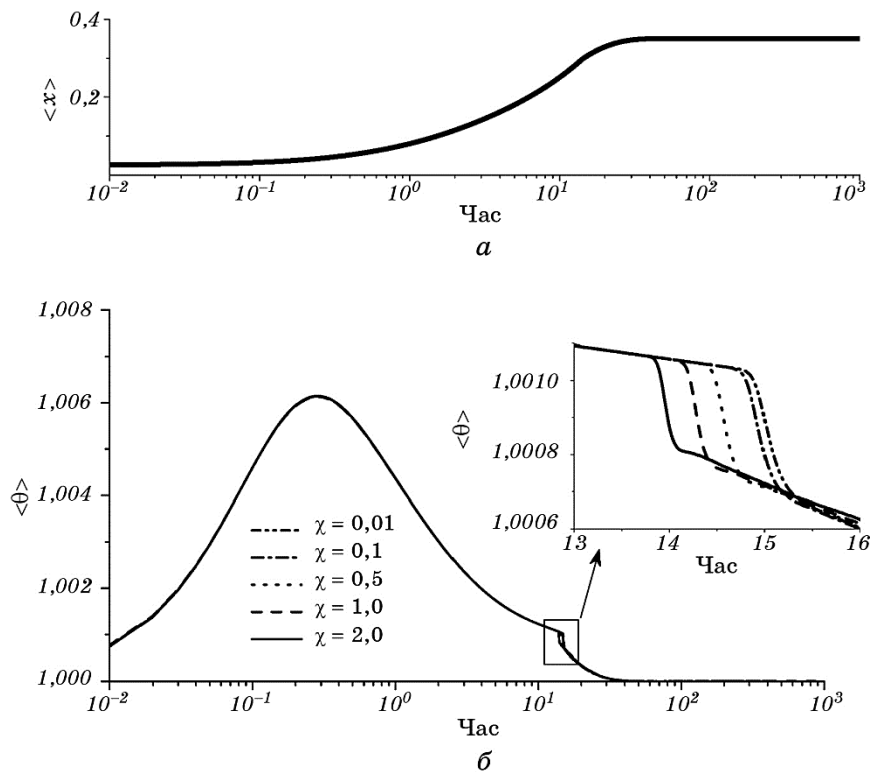


Рис. 4. Еволюція середньої концентрації адсорбату $\langle x \rangle$ (а) та середньої температури поверхні $\langle \theta \rangle$ (б) при різних значеннях теплопровідності χ .

Fig. 4. Evolution of the averaged concentration $\langle x \rangle$ of adsorbate (а) and averaged surface temperature $\langle \theta \rangle$ (б) at different values of thermal conductivity χ .

адсорбату та температури поверхні на часових інтервалах, де спостерігається стрибкоподібна залежність середньої температури поверхні, наведено на рис. 5, а та б відповідно.

Спочатку розглянемо часову залежність $\langle (\delta x)^2 \rangle$ при $\chi = 2$, показану суцільною кривою на рис. 5, а. На початкових стадіях еволюції системи $\langle (\delta x)^2 \rangle = 0$, що означає реалізацію однорідного розподілу адсорбату за всією підкладкою (див. рис. 3 при $t = 10$). При $t = t_c$ параметр порядку починає зростати, що означає реалізацію процесів упорядкування. При $t > t_c$ внаслідок взаємодії адатомів починають формуватися відокремлені структури адсорбату (див. рис. 3 при $t = 20$). При подальшій еволюції системи параметр порядку зростає і відбувається перебудова структур адсорбату, коли малі структури зникають, а великі продовжують зростати (див. рис. 3 при $t = 100$). У стаціонарному режимі параметр порядку набуває постійного ненульового значення — формується стаціонарна картина розподілу

адсорбату по підкладці з відокремленими структурами (див. рис. 4 при $t = 1000$).

З рисунка 5, а видно, що збільшення коефіцієнта теплопровідності χ приводить до зменшення часу t_c , а отже, до пришвидшення процесів упорядкування. Залежність моменту часу t_c від коефіцієнта те-

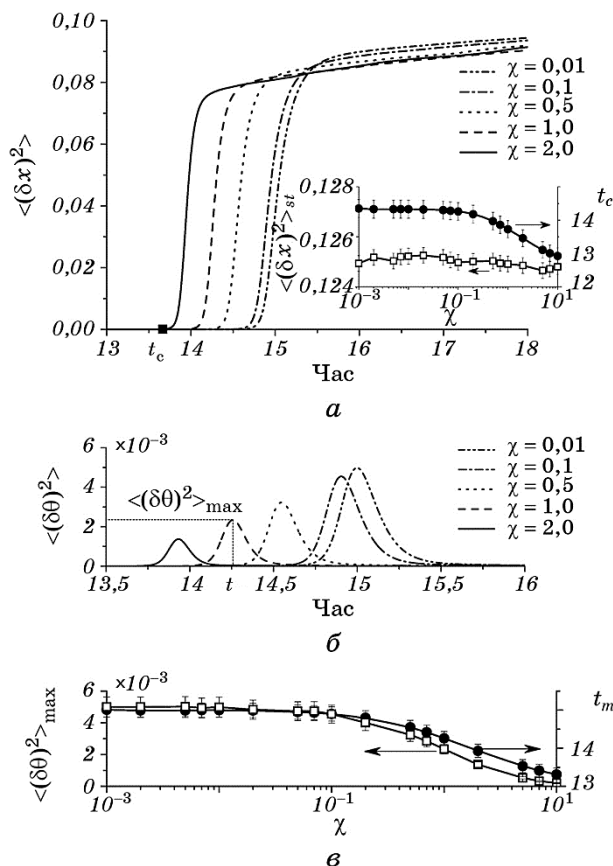


Рис. 5. Залежності параметра порядку (а) та дисперсії поля температури (б) на ранніх стадіях еволюції системи. Залежності стаціонарного значення параметра порядку та моменту часу t_c від коефіцієнта теплопровідності χ наведено на вставці до рисунка (а). Залежності максимального значення дисперсії поля температури та відповідного моменту часу t_m від χ подано на рисунку (в).

Fig. 5. Time dependences of order parameter (a) and dispersion of the temperature field (б) at early stages of the system evolution. Dependences of the stationary value of the order parameter and time instant t_c versus thermal conductivity χ are shown in insert in Fig. (a). Dependences of the maximal value of dispersion of temperature field and corresponding time instant t_m on χ are shown in Fig. (в).

плопровідності χ наведено на вставці до рис. 5, а за допомогою кружків. Одночасно стаціонарне значення параметра порядку не залежить від χ (див. криву з квадратами на вставці до рис. 5, а).

Залежності параметра порядку для поля температури $\langle [\delta\theta(t)]^2 \rangle$ при різних значеннях коефіцієнта теплопровідності χ наведено на рисунку 5, б. З одержаних результатів випливає, що на часових інтервалах $t \in [0, t_c)$ параметр порядку $\langle (\delta\theta)^2 \rangle = 0$, а отже, температура в кожній точці поверхні істотно не відрізняється від середньої. Починаючи з моменту часу $t = t_c$, параметр порядку починає зростати. Це означає, що на поверхні можна виділити області з підвищеним та пониженим значенням температури. В момент часу $t = t_m$ параметр порядку $\langle (\delta\theta)^2 \rangle$ сягає максимального значення $\langle (\delta\theta)^2 \rangle_{\max}$. При подальшій еволюції системи він спадає до нуля. Таким чином, можна стверджувати, що процеси впорядкування поля температури відбуваються реверсивним чином. Вони спостерігаються у вузькому часовому інтервалі, коли на поверхні починають формуватися відокремлені острови адсорбату. З аналізу часових залежностей параметра порядку поля температури випливає, що збільшення коефіцієнта теплопровідності приводить до зменшення як моменту часу t_m , так і максимального значення $\langle (\delta\theta)^2 \rangle_{\max}$. Отже, при малих але скінченних значеннях коефіцієнта теплопровідності в обмеженому часовому інтервалі матимуть місце добре виражені процеси структуроутворення поля температури. Початок формування структур теплового поля та часовий інтервал існування таких структур добре узгоджено з ефектом різкого зниження середньої температури поверхні.

На рисунку 6 представлено ілюстрації часової еволюції поля концентрації адсорбату (зліва) та температури поверхні (справа) при $\chi = 0,1$ в часовому інтервалі реверсивної поведінки дисперсії поля температури. З рисунка видно, що при $t < t_c$ як поле концентрації адсорбату, так і поле температури характеризуються однорідним розподілом без будь-яких структур (див. рис. 6 при $t = 14,0$). При подальшій еволюції системи процеси самоорганізації починають відігравати важливу роль, і при $t = t_c$, де $t_c \cong 14,6$ для фіксованих параметрів системи, на підкладці починають формуватися острови адсорбату (див. ліву колонку на рис. 6 при $t = 14,6$). Такі малі кластери адсорбату є більш гарячими, ніж підкладка (див. розподіл поля температури на рисунку 6 при $t = 14,6$). У момент часу $t = t_m$, де $t_m \cong 14,9$, середній розмір структур адсорбату зростає, різниця температур островів адсорбату та підкладки стає максимальною. На наступних стадіях еволюції системи відбувається перебудова островів адсорбату згідно зі схемою, представленою на рис. 3, а поле температури поверхні стає рівномірно розподіленим. Таким чином, з виконаних розрахунків випливає, що коефіцієнт теплопровідності впливає на перехідні процеси формування структур адсорбату при

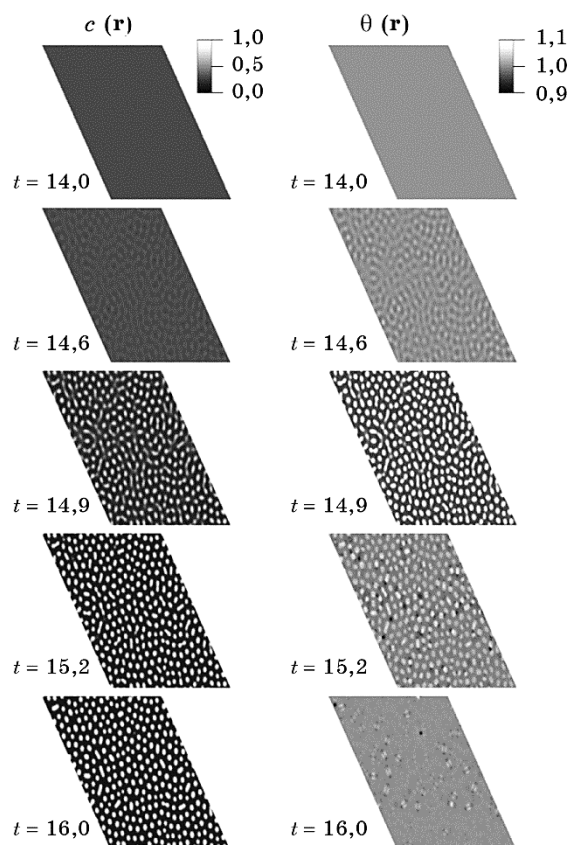


Рис. 6. Еволюція поля концентрації адсорбату $x(\mathbf{r}, t)$ (лівий стовпчик) та поля температури $\theta(\mathbf{r}, t)$ (правий стовпчик) при $\chi = 0,1$.

Fig. 6. Evolution of the adsorbate concentration field $x(\mathbf{r}, t)$ (left column) and temperature field $\theta(\mathbf{r}, t)$ (right column) at $\chi = 0.1$.

конденсації з газової фази. Крім цього встановлено, що різке зменшення середньої температури поверхні може бути ознакою появи періодичної структури теплового поля.

4.2. Статистичні властивості структур адсорбату

У цьому підрозділі ми проаналізуємо вплив коефіцієнта теплопровідності на середній розмір островів адсорбату та розподіл структур адсорбату за розмірами. Для визначення лінійного розміру структур адсорбату будемо діяти наступним чином. Спершу, використовуючи теорію перколяції, визначимо площу S_i кожного острова адсорбату. Враховуючи те, що всі острови адсорбату мають в перерізі

форму кола, розраховуємо лінійні розміри (радіуси) R_i кожної структури. Оскільки система рівнянь (7) містить стохастичне джерело, для усереднення результатів ми виконували 20 незалежних числових експериментів.

Еволюцію середнього лінійного розміру структури адсорбату в одиницях дифузійної довжини за різних значень коефіцієнта теплопровідності наведено на рис. 7. Еволюцію кількості островів адсорбату представлено на вставці до рис. 7. Спочатку проаналізуємо еволюцію середнього розміру структури адсорбату. Слід відмітити, що залежність $\langle R(t) \rangle$ можна розділити на дві стадії: перша стадія відповідає процесам формування та росту островів; друга стадія — перебудові островів. До того ж на першій стадії середній розмір структур зростає з часом за степеневою залежністю $\langle R(t) \rangle \propto t^\delta$. Показник росту δ логаритмічним чином зростає зі збільшенням коефіцієнта теплопровідності χ (див. верхню вставку на рис. 7). Він набуває значень, більших ніж 0,5, а отже, врахування ефектів локальної зміни температури поверхні під час перебігу процесів адсорбції та десорбції приводить до пришвидшеного росту розміру островів, порівняно з нормальним $\langle R(t) \rangle \propto t^{1/2}$. Кількість островів адсорбату падає з часом внаслідок їх перебудови, і в стаціонарному режимі при заданих значеннях коефіцієнта адсорбції, енергії взаємодії адсорбату та інтенсивності формування стійких димерів на підкладці буде формуватися близько 70 структур адсорбату, лінійний розмір яких складатиме приблизно половину дифузійної довжини.

Далі проаналізуємо вплив коефіцієнта теплопровідності на ста-

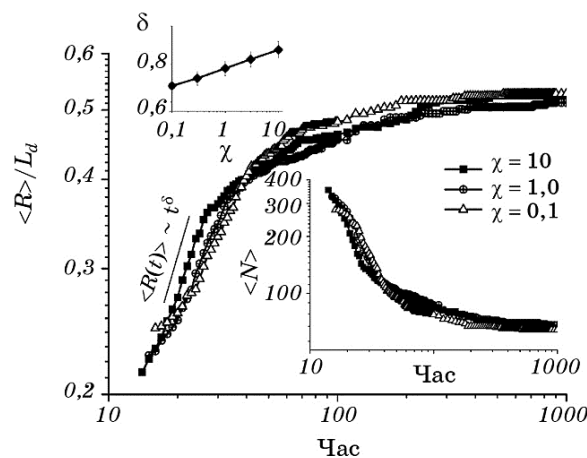


Рис. 7. Еволюція середнього розміру структур адсорбату та середньої кількості структур (нижня вставка) при різних χ .

Fig. 7. Evolution of the mean size of adsorbate structures and the mean number of structures (bottom insert) at different χ .

ціонарний розподіл структур адсорбату за розмірами. Результати розрахунків представлено на рис. 8. З рисунка видно, що розподіл структур за розмірами (за площею, відрахованою від середньої площі структур) є унімодальним, симетричним і центрованим в околі середнього розміру. Більш того, за малих значень коефіцієнта теплопровідності числові дані (трикутники та кружечки) добре узгоджуються з логнормальним розподілом (див. відповідні апроксимації), тоді як при великих значеннях коефіцієнта теплопровідності розподіл структур за розмірами стає Гауссовим (див. квадратики та відповідну апроксимаційну криву). Такий ефект може бути пояснений тим, що при збільшенні дифузійного внеску в рівнянні еволюції температури поверхні всі острови прагнуть набути однакового розміру. Одночасно стаціонарний середній розмір островів адсорбату слабо залежить від коефіцієнта теплопровідності (див. вставку на рис. 8).

Для того, щоб оцінити лінійний розмір структур адсорбату, розглянемо систему Ge/Si(100), де енергетичний бар'єр для формування адатома складає $E_a = 0,6$ еВ, для десорбції адатома $E_d = 1,3$ еВ, для активації дифузії $E_D = 0,65$ еВ, частота осциляцій ґратниці $\omega = 10^{12}$ с⁻¹. Використовуючи параметр ґратниці $a = 5,6 \cdot 10^{-10}$ м для Ge та енергію взаємодії адсорбату $\varepsilon \cong 0,27$ еВ при температурі $T_0 = 773$ К, маємо: час життя адатома $\tau_d \cong [k_{d0}]^{-1} = \omega^{-1} \exp(E_d/T_0) \cong 3 \cdot 10^{-4}$ с, ко-

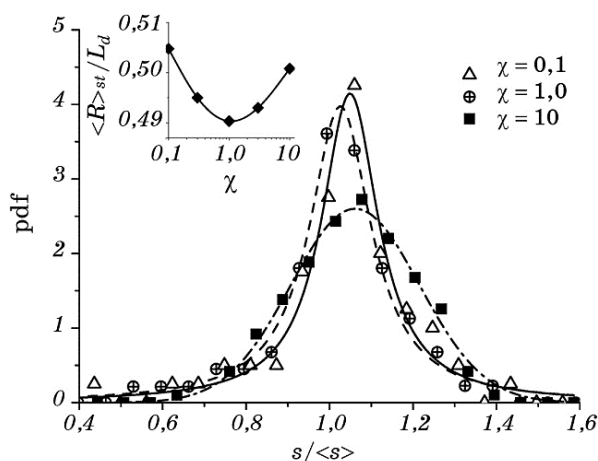


Рис. 8. Розподіли структур за площею в стаціонарному режимі ($t = 1000$) за різних значень коефіцієнта теплопровідності χ . На вставці показано залежність стаціонарного середнього розміру структури адсорбату від χ .

Fig. 8. Distributions (probability density function—pdf) of adsorbate structures over regions in a stationary regime ($t = 1000$) at different values of thermal conductivity χ . In insert, we show dependence of stationary mean size of adsorbate structures on χ .

ефіцієнт дифузії $D = a^2 \omega \exp(E_D/T_0) \cong 1,8 \cdot 10^{-9} \text{ м}^2/\text{с}$, що дає оцінку для дифузійної довжини $L_d = 7,4 \cdot 10^{-8} \text{ м}$. Відповідно до одержаних числових результатів середній лінійний розмір (радіус) стаціонарних структур адсорбату набуває значення $\langle R \rangle \cong (0,49-0,51)L_d \cong 36-38 \text{ нм}$.

5. ВИСНОВКИ

У даній роботі нами досліджено вплив локальних змін температури поверхні на процеси формування структур адсорбату в одношаровому моделюванні конденсації з газової фази з урахуванням нерівноважних реакцій, відповідальних за формування стійких димерів на підкладці. Розглядаючи однорідну систему, встановлено залежності стаціонарного значення концентрації адсорбату від коефіцієнта адсорбції та енергії взаємодії адсорбату. Одержано фазову діаграму, що ілюструє область параметрів, коли в системі реалізуються переходи першого роду. Показано, що збільшення швидкості нерівноважних реакцій приводить до звуження даної області.

Виконано лінійну аналізу на стійкість досліджуваної системи до неоднорідних збурень. Показано, що за відсутності нерівноважних реакцій структуроутворення є неможливим. Одержано фазову діаграму, що визначає область параметрів системи, коли в ході конденсації з газової фази на поверхні будуть формуватися стійкі відокремлені структури адсорбату. Встановлено, що збільшення швидкості нерівноважних реакцій приводить до розширення даної області. Одержано залежності періоду структур від основних параметрів системи.

В межах процедури числового моделювання досліджено динаміку формування структур адсорбату при врахуванні локальних змін температури поверхні. Показано, що збільшення коефіцієнта теплопровідності поверхні приводить до пришвидшення процесів структуроутворення. Встановлено, що у вузькому часовому інтервалі на стадіях формування структур адсорбату поле температури перерозподіляється таким чином, що острови адсорбату є більш гарячими за підкладку. До того ж збільшення коефіцієнта теплопровідності приводить до гомогенізації поля температури внаслідок великого внеску дифузійних процесів. Досліджено еволюцію середнього розміру структур адсорбату та показано, що на стадіях формування та росту островів адсорбату їх середній розмір зростає з часом за степеневим законом. Врахування ефектів локальної зміни температури поверхні приводить до пришвидшеного росту островів адсорбату порівняно з нормальним, а збільшення коефіцієнта теплопровідності поверхні приводить до збільшення показника росту середнього розміру структур. Встановлено, що за малих значень коефіцієнта теплопровідності розподіл структур адсорбату за розмірами характеризується логнормальним законом, тоді як за великих

значень коефіцієнта теплопровідності сильний дифузійний внесок приводить до трансформації розподілу в Гауссів. Виконано кількісну оцінку середнього розміру структур адсорбату, який для системи Ge/Si(100) набуває значень від 36 до 38 нм.

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА—REFERENCES

1. E. Hirota, H. Sakakima, and K. Inomata, *Giant Magneto-Resistance Devices* (Berlin–Heidelberg–New York–Barcelona–Hong Kong–London–Milan–Paris–Tokyo: Springer: 2002).
2. R. J. Warburton, C. Schaflein, D. Haft et al., *Nature*, **405**: 926 (2000).
3. A. Shah, P. Torres, R. Tscherner et al., *Science*, **285**: 692 (1999).
4. Li-Dong Zhao, Shih-Han Lo, Yongsheng Zhang et al., *Nature*, **508**: 373 (2014).
5. K. Pohl, M. C. Bartelt, J. de la Figuera et al., *Nature*, **397**: 238 (1999).
6. Y. W. Mo, B. S. Swartzentruber, R. Kariotis et al., *Phys. Rev. Lett.*, **63**: 2393 (1989).
7. G. E. Cirlin, V. A. Egorov, L. V. Sokolov, and P. Werner, *Semiconductors*, **36**, No. 11: 1294 (2002).
8. J. P. Bucher, E. Hahn, P. Fernandez et al., *Europhys. Lett.*, **27**: 473 (1994).
9. F. Besenbacher, L. Pleth Nielsen, and P. T. Sprunger, *The Chemical Physics of Solid Surfaces* (Eds. D. A. King and D. P. Woodruff) (Heidelberg: Elsevier: 1997), vol. **8**, p. 207.
10. H. N. G. Wadley, X. Zhou, R. A. Johnson et al., *Progress in Materials Science*, **46**: 329 (2001).
11. K. S. Sree Harsha, *Principles of Physical Vapour Deposition of Thin Films* (Amsterdam–Boston–London: Elsevier: 2006).
12. G. Perotto, V. Bello, T. Cesca et al., *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, **268**: 3211 (2010).
13. H. Bernas, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, **268**: 3171 (2010).
14. R. M. Bradley and J. M. E. Harper, *J. Vac. Sci. Technol. A*, **6**, No. 4: 2390 (1988).
15. P. Karmakar, *Nanofabrication by Ion-Beam Sputtering: Fundamentals and Applications* (Eds. T. Som and D. Kanjilal) (Boca Raton, FL: Taylor & Francis Group, LLC: 2013).
16. J. Lian, W. Zhou, Q. M. Wei et al., *Appl. Phys. Lett.*, **88**: 093112 (2006).
17. D. O. Kharchenko, V. O. Kharchenko, I. O. Lysenko et al., *Phys. Rev. E*, **82**: 061108 (2010).
18. V. O. Kharchenko and D. O. Kharchenko, *Cond. Mat. Phys.*, **14**, No. 2: 23602 (2011).
19. V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, and I. O. Lysenko, *Nanotechnology: Synthesis and Characterization* (Ed. J. N. Govil) (Houston: Studium Press LLC: 2013), vol. **2**, p. 367.
20. Yu. Yoshida, N. Sakaguchi, S. Watanabe, and T. Kato, *Appl. Phys. Express*, **4**, No. 5: 055202 (2011).
21. S. M. Huang, M. H. Hong, Y. F. Lu et al., *J. Appl. Phys.*, **91**, No. 5: 3268 (2002).
22. Y. Lu and S. C. Chen, *Nanotechnology*, **14**: 505 (2003).
23. J. A. Venables, G. D. T. Spiller, and M. Hanbucken, *Rep. Prog. Phys.*, **47**: 399 (1984).
24. A. Pimpinelli and J. Villian, *Phys. Cryst. Growth* (Cambridge: Cambridge

- University Press: 1998).
25. R. E. Caflisch, *Proc. of the International Congress of Mathematicians (Madrid, 2006)*, p. 1419.
 26. D. O. Kharchenko, V. O. Kharchenko, and I. O. Lysenko, *Phys. Scr.*, **83**: 045802 (2011).
 27. D. O. Kharchenko, V. O. Kharchenko, T. I. Zhylenko et al., *Eur. Phys. J. B*, **86**: 175 (2013).
 28. D. O. Kharchenko, V. O. Kharchenko, and S. V. Kokhan, *Cond. Mat. Phys.*, **17**: 33004 (2014).
 29. V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, and A. V. Dvornichenko, *Eur. Phys. J. B*, **88**: 3 (2015).
 30. K. Binder and P. Haasen, *Material Science and Technology: Phase Transformations in Materials* (Weinham: Wiley-VCH: 1990), vol. 5, p. 405.
 31. Q. Tran-Cong and A. Harada, *Phys. Rev. Lett.*, **76**: 1162 (1996).
 32. A. Mikhailov and G. Ertl, *Chem. Phys. Lett.*, **238**: 104 (1994).
 33. M. Hildebrand and A. S. Mikhailov, *J. Phys. Chem.*, **100**: 19089 (1996).
 34. D. Batogkh, M. Hildebrand, F. Krischer, and A. Mikhailov, *Phys. Rep.*, **288**: 435 (1997).
 35. M. Hildebrand, A. S. Mikhailov, and G. Ertl, *Phys. Rev. Lett.*, **81**, No. 4: 2602 (1998).
 36. M. Hildebrand, A. S. Mikhailov, and G. Ertl, *Phys. Rev. E*, **58**, No. 11: 5483 (1998).
 37. H. Brune, *Surf. Sci. Reports*, **31**: 121 (1998).
 38. R. E. Caflisch, M. F. Gyure et al., *Phys. Rev. E*, **59**: 6879 (1999).
 39. V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, S. V. Kokhan et al., *Phys. Scr.*, **86**: 055401 (2012).
 40. V. O. Kharchenko and D. O. Kharchenko, *Phys. Rev. E*, **86**: 041143 (2012).
 41. I. Santamaria-Holek, A. Gadomski, and J. M. Rubi, *J. Phys. Condens. Matter*, **23**: 235101 (2011).
 42. S. E. Mangioni and H. S. Wio, *Phys. Rev. E*, **71**: 056203 (2005).
 43. S. E. Mangioni, *Physica A*, **389**: 1799 (2010).
 44. S. B. Casal, H. S. Wio, and S. Mangioni, *Physica A*, **311**: 443 (2002).
 45. V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, and A. V. Dvornichenko, *Surf. Sci.*, **630**: 158 (2014).
 46. J. Swift and P. C. Hohenberg, *Phys. Rev. A*, **15**: 319 (1977).
 47. V. I. Arnold, *Ordinary Differential Equations* (Cambridge: MIT Press: 1973).