

PACS numbers: 05.10.Gg, 05.40.-a, 05.45.Df, 81.15.Aa, 81.15.Hi, 81.16.Rf, 82.40.Np

Моделювання процесів формування пірамідальних структур при епітаксіальному рості

В. О. Харченко, Д. О. Харченко, І. О. Лисенко, С. В. Кожан,
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*

Досліджено процеси формування пірамідальних структур при епітаксіальному рості матеріалів в рамках теорії фазового поля з урахуванням процесів взаємодії адсорбату. За умови незмінної температури поверхні у розгляд уведено флуктуації повного потоку адатомів. Показано, що пірамідальні структури формуються при підвищених значеннях енергії взаємодії адсорбату. Одержано залежності кореляційної довжини вздовж терас пірамідальної структури від керувальних параметрів системи. Встановлено, що збільшення інтенсивності мультиплікативного шуму приводить до формування голкоподібних структур. В рамках узагальненої моделі з урахуванням локальної зміни температури поверхні у процесах адсорбції–десорбції встановлено, що на ранніх стадіях еволюції системи реалізується осциляційний режим формування острівків адсорбату. Виявлено, що частота температурних осциляцій зростає зі збільшенням потоку осадження. Показано, що у даній моделі пірамідальні структури, які характеризуються великою різницею у висотах між двома найближчими терасами, можуть формуватися за низьких значень енергії взаємодії адсорбату. Встановлено показники шерсткості та росту поверхні. Виявлено, що середня кількість острівців зростає з часом за степеневим законом, а середня площа острівців спадає з часом за степеневим законом з тим же за абсолютним значенням показником. Досліджено розподіл острівців адсорбату за розмірами. Проведено оцінювання середнього радіусу структур адсорбату $\langle R \rangle$; він змінюється в інтервалі 100–400 нм. В рамках узагальненого кінетичного підходу побудовано теоретичну модель для опису розподілу структур

адсорбату за розмірами.

We study processes of pyramidal-structures' formation during epitaxial growth within the framework of the phase-field theory by taking into account interactions of adsorbate. In the case of constant surface temperature, fluctuations of the total flux of adsorbate are introduced. As shown, the pyramidal structures can be formed at elevated values of interaction energy for adsorbate. Dependences of the lateral correlation length on the control parameters are computed. As found, an increase in the multiplicative-noise intensity leads to formation of patterns with a needle-like structure. As shown within the framework of the generalized phase-field model by taking into account local change in the surface temperature during adsorption-desorption processes, at early stages of the system evolution, the oscillation regime of pattern formation is realized. As revealed, the frequency of temperature oscillations increases with the deposition-rate growth. As found within the generalized model, pyramidal structures are characterized by large differences in heights between two neighbour terraces and can be formed at low values of interaction energy for adsorbate. Surface growth indicator and roughness exponents are obtained. As determined, the mean number of adsorbate islands grows in time by the power law, and the mean area of pyramidal structures falls down in time by the power law with the same absolute value of exponent. Distributions of adsorbate islands over sizes are studied in detail. An estimation of the mean linear size of adsorbate clusters gives $\langle R \rangle = 100\text{--}400$ nm. Within the framework of the generalized kinetic approach, a theoretical model for the island-size dynamics manifesting the self-similar behaviour and universality of the probability density over the island sizes is proposed.

Исследованы процессы формирования пирамидальных структур при эпитаксиальном росте материалов в рамках теории фазового поля с учётом процессов взаимодействия адсорбата. При условии постоянной температуры поверхности в рассмотрение введены флуктуации полного потока адатомов. Показано, что пирамидальные структуры формируются при повышенных значениях энергии взаимодействия адсорбата. Получены зависимости корреляционной длины вдоль террасы пирамидальной структуры от управляющих параметров системы. Установлено, что увеличение интенсивности мультипликативного шума приводит к формированию иглоподобных структур. В рамках обобщённой модели с учётом локального изменения температуры поверхности в процессах адсорбции-десорбции установлено, что на ранних стадиях эволюции системы реализуется осцилляционный режим формирования островов адсорбата. Установлено, что частота температурных осцилляций растёт с увеличением потока осаждения. Показано, что в данной модели пирамидальные структуры, характеризующиеся большой разницей в высотах между двумя ближайшими террасами, могут формироваться при низких значениях энергии взаимодействия адсорбата. Установлены показатели шероховатости и роста поверхности. Показано, что среднее количество островков растёт со временем по степенному закону, а средняя площадь островков спадает со временем по степенному закону с тем же по абсолютному значению показателем. Исследованы распреде-

лення островков адсорбата по размерам. Проведена оцінка середнього радіуса структур адсорбата $\langle R \rangle$; он змінюється в інтервалі 100–400 нм. В рамках узагальненого кінетичного підходу побудована теоретична модель для описання розподілення структур адсорбата по размерам.

Ключові слова: епітаксія, структури адсорбата, процеси адсорбції–десорбції, теорія фазового поля, мультиплікативний шум, кореляційний аналіз.

Key words: epitaxy, adsorbate structures, adsorption–desorption processes, phase-field theory, multiplicative noise, correlation analysis.

Ключевые слова: эпитаксия, структуры адсорбата, процессы адсорбции–десорбции, теория фазового поля, мультипликативный шум, корреляционный анализ.

(Отримано 11 листопада 2015 р.)

1. ВСТУП

Молекулярно-променева епітаксія є типовим прикладом сучасних технологій, що використовуються для вирощування Монокристалів, які успадковують атомову структуру субстрату. Відомо, що при такому способі вирощування кристалів атоми, що приходять до підкладки (субстрату), можуть адсорбуватися (стати адатомами). Такі адатоми можуть десорбуватися назад в газову фазу зі скінченною ймовірністю. Якщо адатоми залишаються на підкладці, то вони можуть дифундувати по поверхні, займаючи найбільш енергетично вигідні положення. Адатоми можуть взаємодіяти один з одним, утворюючи кластери, острівці та пірамідальні структури. Морфологія поверхневих структур визначається конкуренцією між процесами адсорбції, десорбції, нуклеації, дифузії по сходинці, дифузії через тераси, димерної дифузії, приєднання та від'єднання від межі острівців та коалесценції острівців [1–3]. Основні процеси, що перебігають при епітаксіальному рості, схематично наведено на рис. 1.

Для моделювання процесів росту острівців при епітаксії широко використовуються методи комп'ютерного моделювання. Вони слугують ефективним інструментом для розуміння та пояснення самого процесу епітаксіального росту. На сьогоднішній день найпоширеним чином використовуються кілька теоретичних методів для вивчення різних процесів в рамках схеми багаторівневого моделювання. Поведінка системи може бути розглянута на різних ієрархічних рівнях, що уможливило описати атомарні процеси [4], процеси на дифузійних часових масштабах з утворенням окремих острівців [5], формування структур зі сходинками [6] та зміну

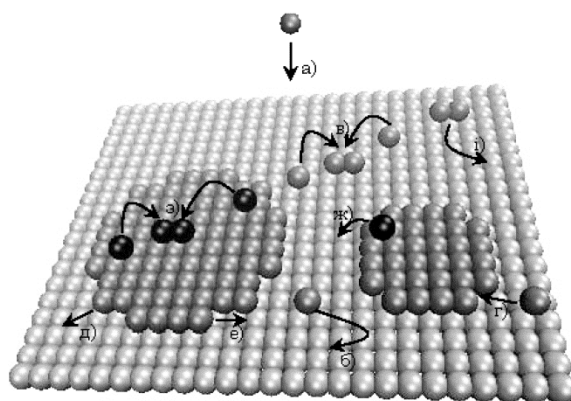


Рис. 1. Схематична презентація процесів, що відбуваються при епітаксiальному рості: а) осадження; б) дифузія; в) нуклеація; г) приєднання; д) від'єднання; е) дифузія вздовж сходинки; ж) дифузія по сходинці; з) нуклеація зверху острівця; і) дифузія димерів.¹

морфології поверхні [7–10]. Атомарна модель ґрунтується на використанні методи кінетичного Монте-Карло (КМК). Найпростіша модель КМК являє собою модель багатоатомної взаємодії і використовується для моделювання процесів осадження «тверде тіло на тверде тіло» [11, 12]. В рамках даної моделі вважається, що існує структура з певною кількістю атомів без вакансій, які утворюють скупчення атомів на поверхні в кожній комірці двовимірної ґратниці. Нові атоми випадковим чином осаджуються на поверхню та можуть мігрувати до сусідньої комірці. При моделюванні динаміки острівців широко використовується мезоскопічна модель Бартона–Кабрера–Франка (БКФ). Вона є дискретною у напрямку росту та неперервною в горизонтальному напрямку і уможливорює представити межі острівців як сходинки [13]. Положення сходинки задається неперервною кривою, а густина атомів на кожній терасі описується неперервною функцією.

Однією з модифікацій моделі БКФ є підхід, заснований на теорії фазового поля. Він широко застосовується для загальної категорії задач із вільними межами, таких як: затвердіння [14], твердотільні фазові переходи [15], Оствальдове визрівання [16], нуклеація [17] тощо. Ця метода може бути подана, як розвинення теорії фазових переходів Гінзбурґа–Ландау. Тут сумісно розв'язуються частинні диференційні рівняння для концентрації та фазового поля, яке відіграє роль параметра порядку. Теорію наближення фазового поля для опису процесів епітаксiального росту було запропоновано вперше в роботі [18]; вона отримала розвинення в роботі [19].

У попередніх дослідженнях було показано, що системи реак-

ційно-дифузійного типу з квазіхімічними реакціями [20–23], системи, які описують процеси адсорбції–десорбції [24–26] та системи піддані йонно-променевою впливові [8, 9] дуже чутливі до флуктуацій, що представляють мультиплікативний шум. Узагальнення підходу фазового поля з урахуванням стохастичних ефектів у процесах пірамідального росту обговорювалося в роботі [27]. Було показано, що флуктуації дифузійного потоку можуть істотно змінювати динаміку зростання острівців і регулювати морфологію поверхневих структур.

При дослідженні епітаксіального росту на основі стандартної моделі БКФ вважалося, що десорбція відбувається з постійною швидкістю. Більш того, процеси взаємодії адатомів (за винятком нуклеації) вважалися неістотними. Однак відомо, що така взаємодія може бути викликана невідповідністю ґратниць або еластичним напруженням. Також передбачається еквівалентність температури конденсату та температури теплової бані (газової фази). Однак, з фізичної точки зору, процеси адсорбції можуть локально збільшувати температуру зростаючої поверхні, в той час як процеси десорбції приводять до локального зниження температури. Крім того, реконструкція терас, сформованих із адатомів на пірамідальних структурах, потребує додаткової кількості енергії, одержаної від адатомів. У такому випадку при формуванні терас температура конденсату може зменшуватися. Таким чином, конкуренція вказаних процесів, навіть на мезоскопічному рівні, може локально змінювати температуру зростаючої поверхні у осциляційний спосіб. Згасні коливання температури конденсату було експериментально виявлено та показано в роботі [28]. Коливання температури в системах з процесами адсорбції і десорбції були теоретично передбачені в роботі [29]. Було показано, що такі коливання викликані фіксованим ненульовим часом релаксації температури, за який температура зростаючої поверхні досягає температури бані. Цей час може бути малим, але фіксованим. Він задається мікроскопічними процесами в системі (реорганізація поверхні за рахунок анігіляції дефектів на поверхні та їх рух на стоки). При цьому проблеми розуміння фізичної причини, що приводить до коливань температури зростаючої поверхні при епітаксії і визначення умов епітаксіального росту, коли реалізується вищезгаданий режим залишаються відкритими.

Слід також зазначити, що з практичної точки зору при дослідженні процесів епітаксіального росту важливим також є визначення скейлінгових характеристик зміни морфології поверхні, а саме, параметру шерсткості, показника росту поверхні, закону росту середнього розміру острівців адсорбату тощо. Такі дослідження для детерміністичної моделі БКФ, узагальненої уведенням фазового поля, проводилися у роботі [19]. Крім того, важли-

вим є питання про розподіл структур адсорбату за розмірами, що має практичну цінність, адже може бути перевірено реальним експериментом.

У даній роботі в рамках методу фазового поля буде проведено теоретичне дослідження процесів епітаксіального росту з урахуванням взаємодії адатомів. Така взаємодія обумовлює міцні зв'язки, що в свою чергу приводить до певного коригування швидкості десорбції, і, як наслідок, до виникнення потоку адатомів, протилежного дифузійному потоку. Нами будуть введені флуктуації такого потоку, що представлятимуть мультиплікативний шум із інтенсивністю, залежною від концентрації адатомів, та будуть проаналізовані стохастичні ефекти епітаксіального росту. Буде показано, що стохастичні ефекти при сильній взаємодії адатомів сприяють формуванню виразних пірамідальних структур, тоді як за слабкої взаємодії шум сприяє формуванню Гауссової поверхні без виражених структур. Вивчаючи процеси росту структур буде показано, що динаміка і упорядкування поверхні може керуватися енергією взаємодії і стохастичним внеском. Крім того, нами буде враховано процеси релаксації температури адсорбату. Буде показано, що конкуренція різних механізмів приводить до нагріву–охолодження поверхні внаслідок адсорбції–десорбції та просторової організації, коли температура поверхні змінюється в осциляційний спосіб. Нами буде встановлено фазову діаграму та визначено параметри системи (енергія взаємодії адсорбату та потік осадження), коли реалізується коливний режим зростання поверхні. Буде проведено порівняння динаміки зростання острівців у стандартній моделі фазового поля, коли температура конденсату еквівалентна до температури підкладки (теплової бані), та узагальненої моделі, коли температура конденсату може локально змінюватись з часом. Для узагальненої моделі буде проведено дослідження показників шерсткості та росту поверхні та скейлінгових характеристик процесу формування структур адсорбату з визначенням показника росту середнього розміру острівців з часом. Буде досліджено розподіл структур адсорбату за розмірами в рамках двох різних підходів. Буде показано, що такий розподіл є універсальним, він не залежить від часу та основних параметрів системи, які зводяться до часу релаксації поля температури, енергії взаємодії адсорбату та потоку осадження. В рамках нелінійного дифузійного рівняння та Цаллісової неадитивної статистики буде аналітично одержано закон розподілу структур за розмірами.

2. МОДЕЛЬ

Для опису зростаючої поверхні будемо досліджувати поведінку

безрозмірні концентрації адсорбату $x = \Omega(c - c_{\text{eq}}^0)$, де c — концентрація адатомів; Ω — атомна площа; c_{eq}^0 — рівноважна концентрація адатомів. У рамках класичної БКФ-моделі зростаючої поверхні рівняння еволюції концентрації адсорбату має вигляд [13]

$$\partial_t x = F - \frac{x}{\tau_{x_0}} + \nabla \cdot D \nabla x. \quad (1)$$

Тут F — це ефективна швидкість осадження, пов'язана з потоком осадження F_d , що приходить на атомну площу Ω у вигляді $F = F_d - c_{\text{eq}} \Omega / \tau_{x_0}$. Величина τ_{x_0} задає середній час осадження адатомів, який визначається згідно з Арреніусовим співвідношенням: $\tau_{x_0} = v_0^{-1} \exp(E_{\text{des}} / T)$, де v_0 — константа, E_{des} — енергія десорбції, T — температура в енергетичних одиницях. Складова $\nabla \cdot D \nabla x$ описує дифузію адатомів з коефіцієнтом поверхневої дифузії $D = a^2 v_d \exp(-E_{\text{diff}} / T)$, де a — параметр ґратниці підкладки, v_d — частота, E_{diff} — енергія дифузійного бар'єру, $E_{\text{des}} < E_{\text{diff}}$.

Далі, згідно з роботами [31–33], будемо вважати, що швидкість процесу десорбції залежить від сили просторової взаємодії адсорбату. Потенціал взаємодії адсорбату $U(\mathbf{r})$ приводить до корекції швидкості десорбції:

$$\tau_x^{-1} = \tau_{x_0}^{-1} \exp(U / T). \quad (2)$$

Потенціал взаємодії адатомів, розділених відстанню r , може бути записаний у вигляді:

$$U(x(\mathbf{r})) = -\int u(\mathbf{r} - \mathbf{r}') x(\mathbf{r}') d\mathbf{r}', \quad (3)$$

де $u(\mathbf{r})$ це сферично-симетрична функція, що залежить від фізичних властивостей матеріалу. У такому разі на адсорбовані частинки (атоми/молекули) діє термодинамічна (хімічна) сила, $\mathbf{f} = -\nabla(U / T)$, що індукує швидкість $\mathbf{v} = D\mathbf{f}$ (Айнштайнове співвідношення). Відповідний потік частинок $\mathbf{v}x$ є протилежним до дифузійного потоку $-D\nabla x$. Оскільки потік можливий лише на $(1 - x)$ вільних місць, то для потоку адсорбату, пов'язаного із взаємодією адатомів, маємо: $\mathbf{J}_0 = -Dx(1 - x)\nabla(U / T)$. Тоді загальний потік адсорбату дається виразом

$$\mathbf{J}_{\text{tot}} = -D[\nabla x + x(1 - x)\nabla(U / T)], \quad (4)$$

а рівняння для поля концентрації адатомів набуває наступного

вигляду

$$\partial_t x = F - \frac{x}{\tau_{x_0}} e^{U/T} - \nabla \cdot \mathbf{J}_{\text{tot}}. \quad (5)$$

Вважаючи, що довжина взаємодії r_0 між двома адатомами є малою порівняно з дифузійною довжиною $\ell = \sqrt{D\tau_{x_0}}$ ($r_0 \cong 1$ нм, $\ell \cong 1$ мкм для металів), для потенціалу взаємодії адатомів (3) можна використати наближення $U(x(r)) \approx -\varepsilon x(r)$, де $\varepsilon = \int u(r) dr$ залежить від властивостей конкретного матеріалу. Представлений формалізм є загальним та може бути застосований для великого класу систем.

Відомо, що числове моделювання в задачах епітаксіального росту, за умови наявності сходинки, є нелегким завданням [34]. В роботах [18, 19] було показано, що модель БКФ може бути замінена на відповідну модель фазового поля, яка уможливує спростити як аналітичний аналіз системи, так і процедуру числового моделювання процесів епітаксіального росту поверхні. Основна ідея наближення фазового поля полягає в уведенні параметру порядку $\varphi(\mathbf{r}, t)$ (див. роботи [19, 35–37]). В нашому випадку фазове поле φ пов'язане з висотою поверхні, вимірної в одиницях параметра ґратниці a , та відповідає кількості моноатомових шарів. Відповідно до роботи [18], локальні стійкі мінімуми параметру порядку пов'язані з терасами. Рівняння еволюції для фазового поля φ має вигляд [18, 19]:

$$\tau_\varphi \partial_t \varphi = - \frac{\delta H}{\delta \varphi}, \quad (6)$$

де функціонал вільної енергії

$$H = \int d\mathbf{r} \left[\frac{\omega^2 (\nabla \varphi)^2}{2} + h(\varphi, x) \right] \quad (7)$$

визначається через густину вільної енергії

$$h(\varphi, x) = \frac{1}{2\pi} \cos(2\pi[\varphi - \varphi_s]) - \lambda x \left(\varphi + \frac{1}{2\pi} \sin(2\pi[\varphi - \varphi_s]) \right). \quad (8)$$

Тут ω визначає ширину сходинки; λ — безрозмірна константа зв'язку, $\varphi_s / 2$ — початкова висота субстрату (підкладки). Складаюча $1 + \cos(\pi[\varphi - \varphi_s])$ означає, що мінімуми функціоналу вільної енергії H можливі лише за умови $\varphi - \varphi_s = 2n + 1$, незалежно від концентрації адатомів [19].

Зазвичай при описі процесів осадження вважається, що температура зростаючої поверхні є незмінною. Однак, як було вказано у попередньому розділі, процеси адсорбції можуть приводити до локального збільшення температури зростаючої поверхні, тоді як внаслідок десорбції адатомів температура поверхні локально зменшується; у процесі формування та реконструкції терас температура конденсату також може змінюватись [38–40]. У такому разі температуру зростаючої поверхні можна вважати полем, що змінюється з часом. Врахування зміни температури зростаючої поверхні приводить до узагальнення потоку адсорбату (4), який з використанням лінійної теорії Онзагера можна записати у наступному вигляді:

$$\mathbf{J}_{\text{tot}} = -M(x)\nabla(\mu / T), \quad (9)$$

де $M(x)$ — кінетичний коефіцієнт; μ — хімічний потенціал, який визначається через функціонал вільної енергії Φ стандартним чином: $\mu = \delta\Phi / \delta x$, де

$$\Phi = \int d\mathbf{r} \left\{ T [x \ln x + (1-x) \ln(1-x)] - \frac{\varepsilon}{2} x^2 \right\}. \quad (10)$$

Визначаючи кінетичний коефіцієнт у формі $M \equiv Dx(1-x)$, для загального потоку одержуємо стандартну формулу:

$$\mathbf{J}_{\text{tot}} = -\frac{M(x)}{T} \nabla \frac{\delta\Phi}{\delta x}. \quad (11)$$

Рівняння еволюції поля температури запишемо у стандартному вигляді [40]:

$$C\rho\partial_t T = -\frac{\gamma_0}{h_0} (T - T_0) + \chi\Delta T + aFx + b\partial_t x. \quad (12)$$

Тут C — питома теплоємність; ρ — густина; h_0 — товщина плівки; γ_0 — коефіцієнт передачі тепла; T_0 — температура середовища (теплової бані); χ — коефіцієнт теплопровідності. Перший член у рівнянні (12) визначає релаксацію температури поверхні до температури середовища T_0 ; другий доданок відповідає за стандартну дифузію. Третя складова описує зміну температури поверхні з інтенсивністю a , внаслідок обміну енергією із середовищем за рахунок потоку адсорбції F . Це стандартне припущення широко використовується при розгляді нестійкості температури в хімічних реакціях (див. роботи [41, 42]). Температура також може змінюватися внаслідок реорганізації поверхні завдяки анігіляції дефектів на поверхні та їх міграції на стоки. Третя складова в рівнянні (12) не враховує зміну температури в околі схо-

динки. Така зміна температури може бути описана параметром порядку (фазовим полем). В нашому випадку цей ефект враховується через введення останнього доданку в рівняння (12). Це пов'язано також з локальним нагрівом ($\partial x / \partial t > 0$) або охолодженням ($\partial x / \partial t < 0$) при проходженні процесів адсорбції/десорбції з інтенсивністю b та, у загальному випадку, з формуванням сходинки.

Далі зручно перейти до безрозмірних величин, вимірюючи час в одиницях τ_{x_0} , а просторову змінну — у величинах дифузійної довжини $\ell = \sqrt{D\tau_{x_0}}$. Уводячи безрозмірні константи $\chi' \equiv \chi h / \gamma_0$, $a' \equiv ah / \gamma_0 T_0$, $b' \equiv bh / \gamma_0 T_0$, $F' \equiv F\tau_{x_0}$, $v \equiv \tau_{x_0} C\rho h / \gamma_0$, рівнянню еволюції безрозмірної температури $\theta \equiv T / T_0$ надаємо вигляду:

$$v\partial_t\theta = 1 - \theta + \chi'\Delta\theta + a'F'x + b'\partial_t x. \quad (13)$$

Таким чином, опускаючи штрихи, загальній системі рівнянь, що описує процеси росту пірамідальних острівців адсорбату у процесі епітаксіального росту з урахуванням локальних змін поля температури, надамо вигляд:

$$\begin{aligned} \partial_t x &= F - xe^{-\varepsilon x/\theta} - \nabla \cdot \mathbf{J}_{\text{tot}} - \frac{1}{2} \partial_t \varphi, \\ \partial_t \varphi &= \varpi^2 \Delta \varphi - \partial_\varphi h(x, \varphi), \\ v\partial_t \theta &= 1 - \theta + \chi \Delta \theta + aF'x + b\partial_t x. \end{aligned} \quad (14)$$

Тут уведено позначення $\varepsilon \equiv \varepsilon / T_0$ та враховано, що $\tau_\varphi / \tau_{x_0} = 1$; v визначає час релаксації поля температури. Останній доданок у рівнянні концентрації адатомів пов'язаний із переносом маси через сходинку.

У подальшому розглянемо властивості зростаючої поверхні при епітаксіальному рості, проаналізуємо вплив основних параметрів системи на характер зміни поверхневих структур і детально вивчимо статистичні характеристики утворюваних пірамідальних структур на поверхні матеріалів у процесі епітаксіального росту.

3. ЕВОЛЮЦІЯ ПОВЕРХНІ ЗА СТАЛОЇ ТЕМПЕРАТУРИ

Даний розділ присвячено дослідженню процесів формування пірамідальних структур на поверхні при епітаксіальному рості за умови, що температура адсорбату T слабо відрізняється від температури бані T_0 . Таким чином, за умови постійної температури система рівнянь (14) зведеться до системи двох рівнянь на кон-

центрацію адатомів (5) та фазове поле (6); потік адсорбату задається виразом (4).

Оскільки опис системи проводиться на мезоскопічному рівні, для розгляду системи за реальних умов необхідним є врахування ефектів перерозподілу адатомів на мікроскопічному рівні. Це забезпечується уведенням у розгляд відповідних флуктуацій. В рамках стандартної процедури [20, 32, 33] будемо вважати, що повний потік складається з регулярної компоненти $-D_{ef}(x)\nabla x$, де $D_{ef}(x) = D[1 - \varepsilon x(1 - x)]$, і зі стохастичної $\zeta(x; \mathbf{r}, t)$. Такі флуктуації представлятимуться мультиплікативним шумом з Гауссовими властивостями: $\langle \zeta(\mathbf{r}, t) \rangle = 0$, $\langle \zeta(\mathbf{r}, t)\zeta(\mathbf{r}', t') \rangle = 2\Sigma D_{ef}(x)\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')\delta(t - t')$, Σ — інтенсивність шуму, пропорційна температурі T_0 .

Тоді, в представленні Стратоновича система рівнянь на концентрацію адатомів і фазове поле набуває вигляду:

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} = \omega^2 \Delta \varphi + \sin(\pi[\varphi - \varphi_s]) + \lambda x(1 + \cos(\pi[\varphi - \varphi_s])), \quad (15)$$

$$\frac{\partial x}{\partial t} = F - x e^{-\varepsilon x} + \nabla \cdot D_{ef}(x)\nabla x - \frac{\Sigma}{2} \nabla \cdot \left(\nabla \frac{\partial D_{ef}(x)}{\partial x} \right) + \nabla \cdot \sqrt{D_{ef}(x)}\zeta(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{2} \frac{\partial \varphi}{\partial t},$$

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

Для аналізу системи на стійкість розглянемо поведінку середнього $\langle x \rangle$. Усереднюючи за шумом, приходимо до рівняння на перший статистичний момент у формі:

$$\frac{\partial \langle x \rangle}{\partial t} = F - \langle x e^{-\varepsilon x} \rangle + \nabla \cdot \langle D_{ef}(x)\nabla x \rangle - \frac{\Sigma}{2} \nabla \cdot \left(\nabla \left\langle \frac{\partial D_{ef}(x)}{\partial x} \right\rangle \right). \quad (16)$$

Звідси випливає, що на малому часі флуктуації потоку не призводять до дестабілізації стану $\langle x \rangle = 0$. Дійсно, у лінійному наближенні при $\varepsilon = 1$ для Фур'є-перетвору $\langle x(t)_k \rangle = \int \langle x(\mathbf{r}, t) \rangle e^{ik\mathbf{r}} d\mathbf{r}$ маємо:

$$\frac{\partial \langle x_k \rangle}{\partial t} = F + \varepsilon k^2 - \langle x_k \rangle - k^2(1 + \Sigma\varepsilon)\langle x_k \rangle. \quad (17)$$

Звідси видно, що флуктуації потоку сприяють стабілізації стану: $\langle x \rangle = 0$.

3.1. Чисельне моделювання динаміки росту поверхні

Для дослідження динаміки росту поверхні скористаємося число-

вим моделюванням. Для цього чисельно розв'язуватимемо систему рівнянь (15) на 2-вимірній квадратній ґратниці розміром $L \times L$ з $L = 512\ell$, просторовим кроком інтегрування $\ell = 1,0$, кроком за часом $\delta t = 0,005$ при $\omega^2 = 2,0$, $\lambda = 10,0$. Варто зазначити, що за різних початкових умов (початковий розподіл фазового поля) в процесі епітаксіального росту формуватимуться різні типи поверхневих структур, які успадковують структуру початкової поверхні. Так, за умови абсолютно гладкої поверхні (без дефектів), що відповідає значенню $\varphi_s(\mathbf{r}, 0) = 0$, з часом поверхня буде рости шар за шаром без будь-яких структур. За умови наявності точкового дефекту на поверхні (адатома) з часом буде утворюватися «дитяча» піраміда, що зростатиме вгору на адатомі ($\varphi_s = 0$ при всіх значеннях i, j , крім $i = j = L/2$, де $\varphi_s = \pm 1$). На лінійних дефектах (одна крайова дислокація з початковими умовами $\varphi_s = 1$ для $i, j > L/2$; в інших випадках $\varphi_s = 0$) тераси піраміди утворюватимуться у паралельних до лінійних дефектів напрямках. Наявність гвинтової дислокації ($\pi\varphi_s = \arctan(j/i)$) приведе до формування пірамідальної структури (гвинтової піраміди). Еволюцію типових структур при різних початкових умовах представлено на рис. 2.

За реальних умов поверхня характеризується ненульовою шерсткістю, а отже, і великою кількістю різних поверхневих дефектів. Для дослідження росту такої поверхні розглянемо систему з наступними початковими умовами: $\mathbf{x}(\mathbf{r}, t = 0) = 0$ і $\langle \varphi(\mathbf{r}, t = 0) \rangle \equiv \langle \varphi_s \rangle = 0$ з малою дисперсією $\langle (\delta\varphi(\mathbf{r}, t = 0))^2 \rangle = 0,1$ (Гауссів розподіл параме-

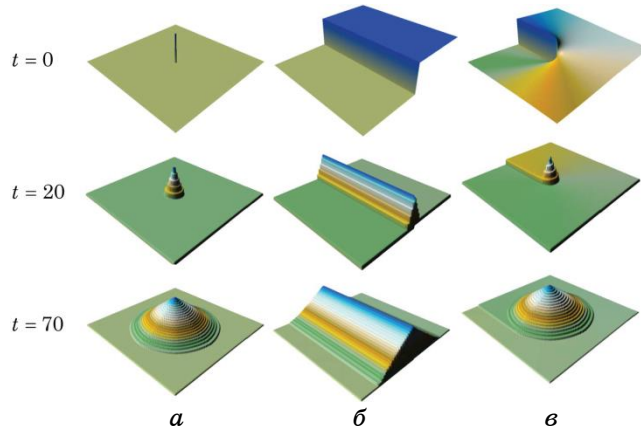


Рис. 2. Ілюстрації часової еволюції параметру порядку ϕ при $t = 0, 20$ та 70 (зверху вниз) при різних початкових умовах: а) наявність одного адатома в центрі; б) наявність крайової дислокації; в) наявність гвинтової дислокації.²

тру порядку). Типова картина еволюції системи при різних значеннях енергії взаємодії адсорбату ε та потоку осадження F для детерміністичної системи зображена на рис. 3.

З нього видно, що під час еволюції системи на поверхні при підвищеній енергії взаємодії адсорбату (див. рис. 3, *a, б*) утворюються пірамідальні структури. З часом ці структури ростуть та збільшуються: на великих проміжках часу залишаються лише великі піраміди. У випадку малих ε (див. рис. 3, *в*) структури починають утворюватися вже на ранніх стадіях, однак з часом, в зв'язку з малою енергією взаємодії адсорбату, укрупнення не відбувається. Тут процеси десорбції переважають процеси поєднання кластерів адатомів.

Далі дослідимо поведінку системи, розглядаючи три наступні величини: ширину перехідного шару (межі) W^2 , асиметрію m_3 та ексцес m_4 :

$$m_3 = \frac{\langle (\varphi(\mathbf{r}) - \langle \varphi(\mathbf{r}) \rangle)^3 \rangle}{W^3}, \quad m_4 = \frac{\langle (\varphi(\mathbf{r}) - \langle \varphi(\mathbf{r}) \rangle)^4 \rangle}{W^4}, \quad W^2 = \langle (\varphi(\mathbf{r}) - \langle \varphi(\mathbf{r}) \rangle)^2 \rangle, \quad (18)$$

де $\langle \varphi(\mathbf{r}) \rangle$ — середнє значення поля висоти, $\langle \varphi(\mathbf{r}) \rangle \equiv L^{-2} \sum_{\mathbf{r}} \varphi(\mathbf{r}, t)$.

Величина m_3 визначає симетрію профілю розподілу висоти (параметра порядку) відносно середнього рівня. Її знак свідчить про положення точок пропорційно над ($m_3 > 0$) або під ($m_3 < 0$) середнім рівнем поверхні. Ексцес є мірою хаотичності поверхні, що показує рівень гладкості функції розподілу ймовірності висот.

Динаміку трьох вищезазначених величин при різних значен-

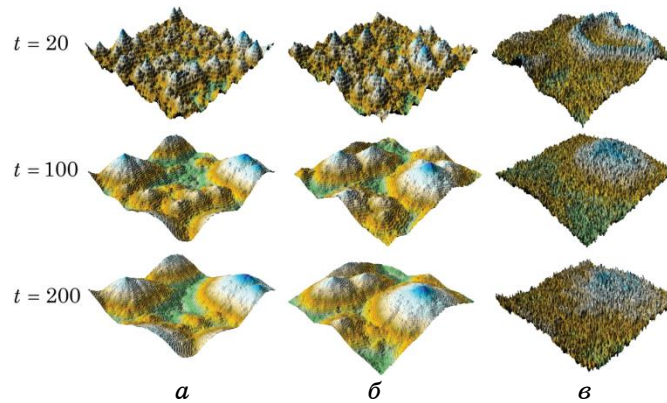


Рис. 3. Ілюстрації часової еволюції параметру порядку ϕ при: *a*) $\varepsilon = 4,0$, $F = 2,0$; *б*) $\varepsilon = 4,0$, $F = 4,0$; *в*) $\varepsilon = 2,0$, $F = 2,0$.³

нях енергії взаємодії адсорбату для детерміністичної та стохастичної моделей при постійному значенні потоку осадження ($F = 2$) зображено на рис. 4. Величина W^2 відіграє роль ефективного параметра порядку, що для ідеально гладкої поверхні прямує до нуля. Це означає, що ніякі організовані структури не реалізуються. Для повністю неупорядкованої поверхні цей параметр змінюється випадковим чином в околі малого ненульового значення. Збільшення W^2 з часом означає реалізацію процесів упорядкування на поверхні і, як наслідок, формування чітко визначених розділених острівців. Коли $W^2(t)$ сягає стаціонарного ненульового значення, процеси впорядкування завершуються, і зростаючу поверхню можна характеризувати як повністю впорядковану.

При різних значеннях ε на представлених залежностях можна бачити різну динаміку поверхні. Дійсно, при $\varepsilon = 4$ величина $W^2(t)$ зростає до свого стаціонарного значення, тоді як при малих $\varepsilon = 2$ вона спочатку зростає, а потім починає спадати. Така радикальна зміна поведінки є наслідком малої сили взаємодії, яка не може спровокувати зростання структур. Структури розпоршуються, формуючи поверхню з Гауссовою функцією розподілу висот. Порівнюючи криві для детерміністичної та стохастичної моделі ($\Sigma = 0, 25$), можна стверджувати, що при великих ε шум затри-

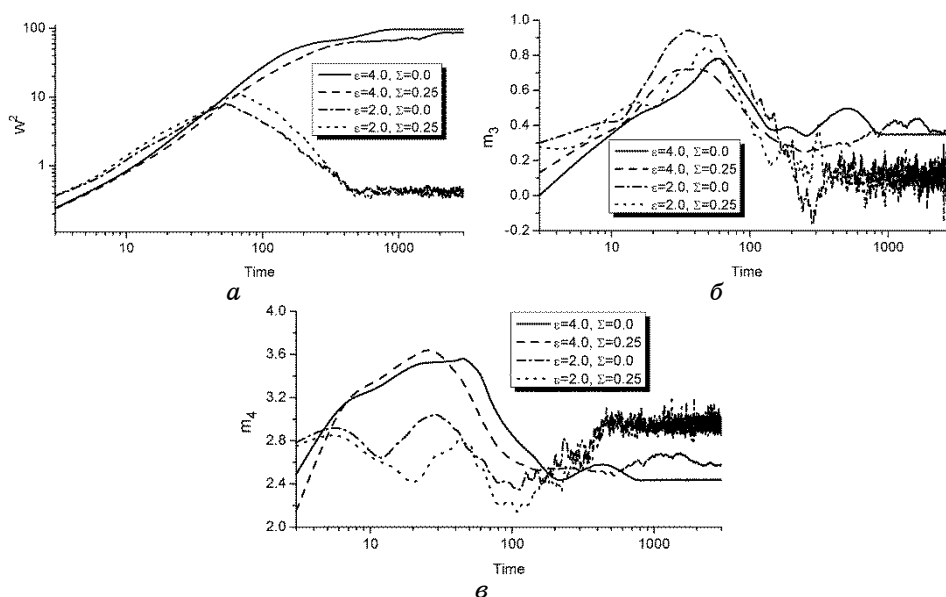


Рис. 4. Еволюція: а) ширини межі W^2 , б) асиметрії m_3 , в) ексцесу m_4 при різних значеннях енергії взаємодії адсорбату ε , інтенсивності флуктуацій Σ та постійному значенні потоку осадження $F = 2$.⁴

мує процеси росту, тоді як на малих — навпаки пришвидшує на ранніх стадіях: при малих ε з $\Sigma \neq 0$ дана крива знаходиться над відповідною детерміністичною кривою. Збільшення потоку осадження F не має істотного впливу на динаміку $W^2(t)$. При малих F шум підтримує розвиток поверхні на великих часових інтервалах, коли визначну роль при структуроутворенні починають відігравати нелінійні ефекти. За підвищених значень потоку осадження шум приводить до зменшення W^2 на великих часових інтервалах.

У випадку малих значень енергії взаємодії адсорбату, $\varepsilon = 2$, асиметрія та ексцес прямують до Гауссових значень, $m_3 = 0$ і $m_4 = 3$, та флуктуюють в їх околі. Отже, функція ймовірності розподілу висот буде Гауссовою (симетричною) і центрованою в околі середнього $\langle \varphi \rangle$. Порівнюючи криві для асиметрії та ексцесу при великих ε на пізніх стадіях легко бачити, що як m_3 , так і m_4 відхиляються від значень, що відповідають Гауссовому розподілу. Таким чином, відповідна функція розподілу висот не є Гауссовою. Вона буде асиметричною і нецентрованою в околі середнього $\langle \varphi \rangle$. Функції розподілу за висотами при різних значеннях ε та Σ зображено на рис. 5.

Видно, що за умови сильної взаємодії (див. рис. 5, а при $\varepsilon = 4$) густина ймовірності характеризується великою кількістю піків, що відповідають терасам на пірамідальних структурах (кількість піків відповідає кількості терас): найнижчий пік відповідає верхньому рівню пірамідальної структури, тоді як найвищий пік позначає найнижчий її рівень. На рисунку 5, а апроксимація піків, що представлена штриховою кривою, задовольняє узагальненому екстремальному розподілу (Generalized Extreme Value Distribution), який має вигляд:

$$f_{GEV}(z; \mu, \kappa) = \frac{1}{\kappa} \exp\left(-\frac{z - \mu}{\kappa}\right) \exp\left\{-\exp\left(-\frac{z - \mu}{\kappa}\right)\right\},$$

де μ і κ — апроксимаційні параметри. Аналогічний розподіл спостерігався при обчисленні розподілу острівців адсорбату за розмірами при дослідженні процесів конденсації з газової фази [26].

Залежності густин ймовірності при малих ε наведено на рис. 5, б на великих часових інтервалах. Тут суцільними чорними кривими наведено апроксимацію числових залежностей мультипіковими Гауссіанами; штриховими кривими наведено апроксимацію Гауссіаном основних піків числових даних. Звідси випливає, що для майже Гауссової поверхні при $\varepsilon = 2$ загальна густина ймовірності задовольняє Гауссовому розподілу, центрованому в нулі. Видно, що у такому разі кількість піків незначна. Це означає, що під час еволюції при досягненні великої концентрації

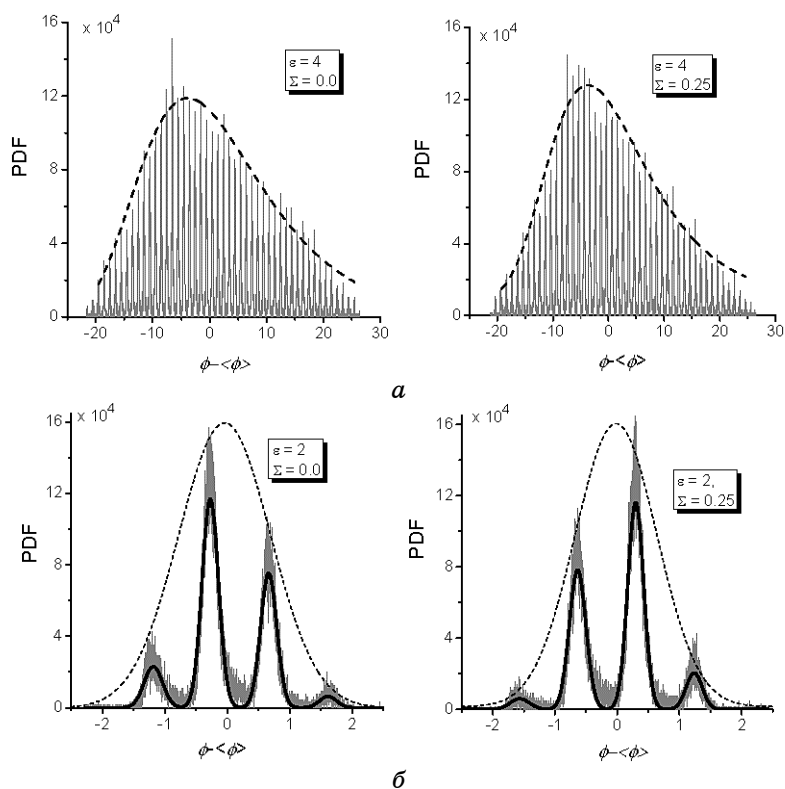


Рис. 5. Функція густини розподілу за висотами при $t = 200$ та різних значеннях енергії взаємодії адсорбату для детерміністичної та стохастичної систем при $F = 2$.⁵

адатомів вирішальними стають процеси десорбції та дифузії, які руйнують тераси. У такому випадку адатомам недостатньо енергії для того, щоб взаємодіяти, утворюючи пірамідальні структури. Таким чином, при малих ε не формуються явно виражені структури, і поверхня має Гауссів профіль. Слід зазначити, що флуктуації не впливають істотно на характер даного розподілу.

3.2. Індуковані шумом процеси упорядкування

Кореляційна функція висоти, яку визначають наступним чином: $C_0(r) = \langle (\varphi(r_0 + r) - \langle \varphi \rangle)(\varphi(r_0) - \langle \varphi \rangle) \rangle$, є одним із критеріїв просторового упорядкування. Для поверхні, яка має самоафінний характер на малих просторових масштабах і гладка на великих масштабах, можна використати наближення

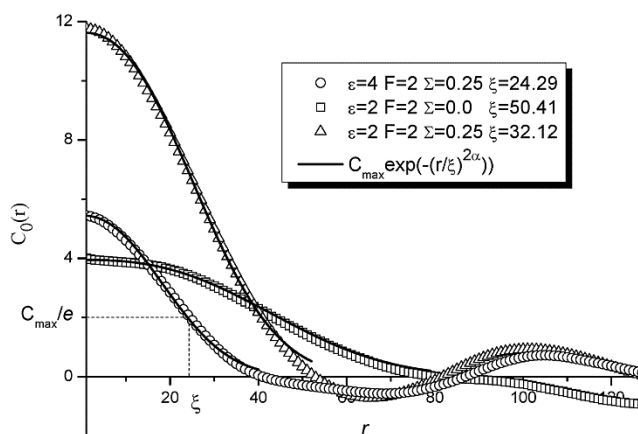


Рис. 6. Залежності кореляційних функцій при різних значеннях параметрів системи та відповідні апроксимації.⁶

$$C_0(r) = C_{\max} \exp\left(-\left(r / \xi\right)^{2\alpha}\right), \quad (19)$$

де ξ — поверхневий кореляційний радіус, що визначає середню довжину, для якої висоти між двома точками поверхні є скорельованими. Показник шерсткості α пов'язаний із локальною фрактальною розмірністю: $D = 3 - \alpha$ [43–45]. Величина C_{\max} характеризує вертикальну шерсткість поверхні. Великі ξ означають, що будь-які дві точки поверхні скорельовані між собою, тобто різниця їх висот є малою і не можливим є утворення добре виражених пірамідальних структур. Навпаки, якщо така різниця висот є значною, то ξ є малим, тобто дві точки поверхні менш пов'язані між собою. Таким чином, можлива поява різних терас, що проявляється у формуванні пірамідальних структур. Залежності кореляційних функцій при різних значеннях параметрів системи та відповідні апроксимації представлено на рис. 6. З нього видно, що спадання відповідної кореляційної функції незалежно від параметрів системи добре апроксимується залежністю (19), що дає змогу з великою точністю встановити значення кореляційного радіусу.

Розглянемо залежності $\xi(\varepsilon)$ і $\xi(\Sigma)$ у фіксований момент часу $t = 40$, що представлені на рис. 7, а, б відповідно. Як було зазначено раніше, при малих ε , в зв'язку з малою силою взаємодії адатомів, утворення пірамідальних структур є неможливим. При збільшенні значення ε з'являються пірамідальні структури з добре вираженими терасами. За відсутності шуму ($\Sigma = 0$) спостерігається аналогічна ситуація на залежності $\xi(\varepsilon)$ (див. криву з порожніми кружками на рис. 7, а). При малих ε структурам при-

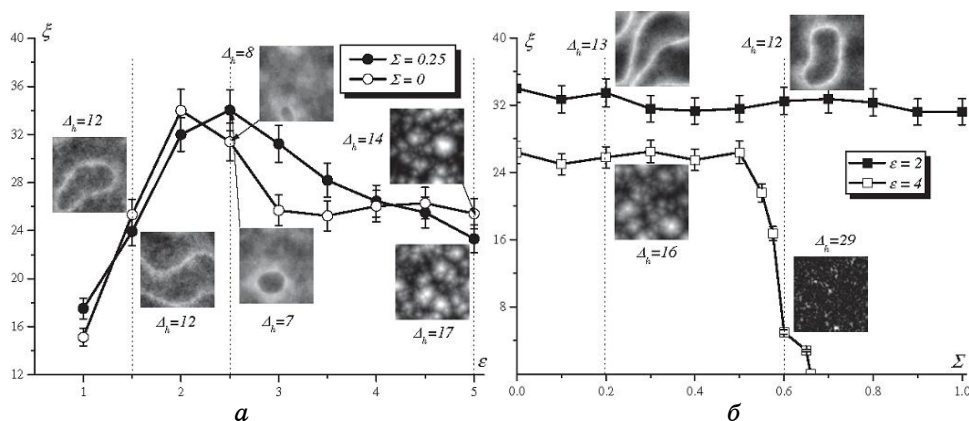


Рис. 7. (а) Радіус кореляції ξ як функція енергії взаємодії ε (вставлені знімки відповідають $\varepsilon = 1,5$, $\varepsilon = 2,5$ і $\varepsilon = 5$); (б) ξ в залежності від інтенсивності шуму Σ (знімки відповідають $\Sigma = 0,2$ і $\Sigma = 0,6$). Решта параметрів: $F = 2$, $t = 40$. Тут $\Delta_h = \langle \phi_{\max} - \phi_{\min} \rangle$ визначає середню різницю висот між найнижчою ϕ_{\min} і найвищою ϕ_{\max} точками поверхні.⁷

таманне мале значення кореляційного радіусу та велика різниця висот. При великих ε добре визначені пірамідальні структури описуються великою різницею висот та малими значеннями кореляційного радіусу. При проміжних значеннях ε утворюються структури з великим значенням кореляційного радіусу і малою різницею висот (див. вставки на рис. 7, а).

Реверсивний характер залежності кореляційного радіусу від енергії взаємодії адсорбату свідчить про перехід від випадкової неупорядкованої поверхні з великою різницею висот, до пірамідальних структур через Гауссову поверхню з малою різницею висот. Іншими словами, збільшення енергії взаємодії приводить до конкуренції процесів абсорбції та десорбції-дифузії, що сприяє формуванню поверхні з пірамідальними структурами. Внесок шуму (див. криву з темними кружками на рис. 7, а) зсуває дану залежність в бік більших значень енергії взаємодії.

Далі розглянемо поведінку кореляційного радіусу в залежності від інтенсивності шуму, що представлено на рис. 7, б. При малих ε шум не приводить до утворення пірамідальних структур з добре вираженими терасами, а отже, кореляційний радіус не залежить від інтенсивності шуму Σ (див. темні квадратики на рис. 7, б). У випадку великої енергії взаємодії (див. пусті квадратики на рис. 7, б) шум істотно не впливає на структуроутворення при малих інтенсивностях. При великій інтенсивності шуму відповідні флуктуації приводять до утворення голкоподібних структур, коли ширина тераси є нескінченно малою.

4. ВПЛИВ ЛОКАЛЬНОЇ ЗМІНИ ТЕМПЕРАТУРИ ЗРОСТАЮЧОЇ ПОВЕРХНІ

Далі детально розглянемо узагальнену модель, враховуючи вплив локальної зміни температури адсорбату у процесах адсорбції, десорбції та реконструкції терас. У такому разі процес епітаксіального росту поверхні буде описуватися системою рівнянь (14) з потоком адсорбату J_{tot} , що дається рівнянням (11). Для моделювання процесу епітаксіального росту в реальних умовах до рівняння для еволюції концентрації адсорбату нами уведено флуктуаційне джерело $\zeta(\mathbf{r}, t)$ у формі Гауссового білого шуму зі стандартними властивостями: $\langle \zeta \rangle = 0$, $\langle \zeta(\mathbf{r}, t) \zeta(\mathbf{r}', t') \rangle = \Sigma \delta(t - t') \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$, Σ — інтенсивність шуму. Спочатку розглянемо окремо двокомпонентну модель, виключаючи фазове поле.

4.1. Аналіз на стійкість двокомпонентної моделі

Відомо, що, досліджуючи часову поведінку поля ϕ , можна описати різні режими еволюції системи і відповідну зміну морфології поверхні [18]. У випадку $\partial_t \phi = 0$ висота поверхні з часом не змінюється: ймовірності процесів адсорбції та десорбції є еквівалентними. У випадку $\partial_t \phi \equiv v_\phi > 0$ висота поверхні зростає з часом. Тут слід розрізняти два можливі випадки: $v_\phi = \text{const}$ і $v_\phi = v_\phi(t)$. В першому випадку висота зростає з постійною швидкістю. Така ситуація відповідає механізму Франка-ван дер Мерве (пошарове зростання). У більш складному випадку, коли $v_\phi = v_\phi(t)$, динаміка поля висоти ϕ визначає процеси формування острівців (механізм Фольмера-Вебера або Странського-Крастанова). У випадку $\partial_t \phi < 0$ процеси десорбції-випаровування мають перевагу, і в результаті висота поверхні зменшується.

Розглянемо два випадки, а саме, $v_\phi = 0$ та $v_\phi = \text{const} > 0$. Для цих двох випадків проаналізуємо статистичні середні. При проведенні аналізу системи на стійкість розглянемо найпростіший випадок, пов'язаний з макроскопічним наближенням, що уможливорює знехтувати всіма можливими кореляціями (складовими з просторовими операторами) в системі. Для вивчення випадку $v_\phi > 0$ припустимо, що $\phi \approx v_\phi t$. Отже, проводячи усереднення другого рівняння системи (14), одержуємо співвідношення $\langle v_\phi \rangle \approx \lambda x_0$, де $x_0 \equiv \langle x(t \rightarrow \infty) \rangle = \text{const}$ визначає стаціонарне значення поля концентрації. Таким чином, динаміка середніх в макроскопічному наближенні може бути описана системою двох рівнянь у вигляді:

$$\partial_t \langle x \rangle = F - \langle x \rangle e^{-\varepsilon \langle x \rangle / \langle \theta \rangle} - \frac{1}{2} \langle v_\phi \rangle, \quad v \partial_t \langle \theta \rangle = 1 - \langle \theta \rangle + a F \langle x \rangle + b \partial_t \langle x \rangle; \quad (20)$$

тут $\langle v_\varphi \rangle$ набуває двох значень: $\langle v_\varphi \rangle = 0$ (поверхня не зростає) та $\langle v_\varphi \rangle = \lambda x_0 > 0$ (зростання поверхні з постійною швидкістю). При $v_\varphi = 0$ ця система характеризується двома стаціонарними станами $\{x_0^{(1)}, \theta_0^{(1)}\}$, $\{x_0^{(2)}, \theta_0^{(2)}\}$ при певних фіксованих значеннях керувальних параметрів, що зводяться до F , ε , a та b .

Розглянемо найпростіший випадок формування гладкої поверхні. Стаціонарні значення концентрації адатомів та температури визначаються розв'язком двох рівнянь: $\theta_0 = 1 + aFx_0$ та $F = x_0 e^{-\varepsilon x_0 / (1 + aFx_0)}$. Відповідні залежності $x_0^{(1,2)}$ та $\theta_0^{(1,2)}$ від F представлені на рис. 8, *a*. Тут суцільна та штрихова криві відповідають $\{x_0^{(1)}, \theta_0^{(1)}\}$ та $\{x_0^{(2)}, \theta_0^{(2)}\}$ відповідно. Видно, що стаціонарні стани можливі нижче критичного значення потоку, що позначено як F_c . Використовуючи стандартну процедуру лінійного аналізу стійкості стаціонарних станів при $v_\varphi = 0$ встановлено, що стан, який характеризується великим значенням концентрації адсорбату та відповідної температури (штрихові лінії на рис. 8, *a*), є нестійким. Порівнюючи одержані результати для узагальненої моделі із результатами, одержаними у підході при незмінній температурі ($\theta = 1$), можна показати, що стаціонарне значення для концентрації адатомів визначається з розв'язку рівняння $F = x_0 e^{\varepsilon x_0}$. Відповідна фазова діаграма може бути одержана аналітично і зв'язок між критичними значеннями ε та F дається ви-

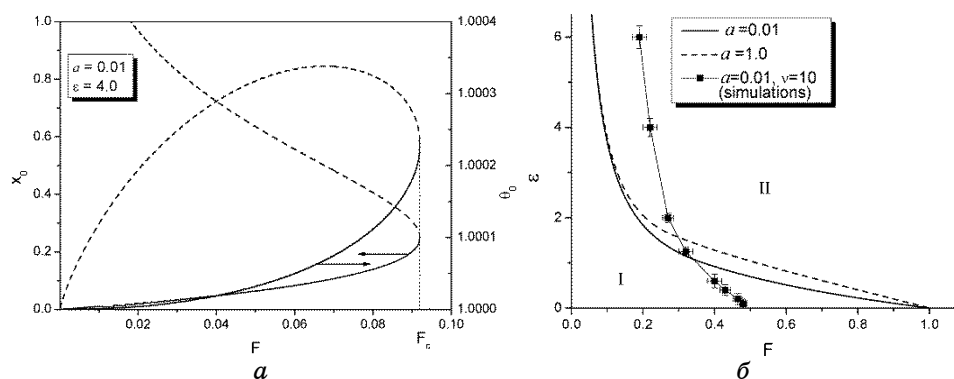


Рис. 8. (а) Стаціонарні стани однорідної системи (20) за потоку F . (б) Фазова діаграма системи (в області I острівці не ростуть, оскільки $\partial_t \langle \phi \rangle = 0$; в області II острівці ростуть завдяки $\partial_t \langle \phi \rangle > 0$).⁸

разом: $F = (\epsilon\epsilon)^{-1}$. Використовуючи біфуркаційну діаграму, представлену на рис. 8, *a*, можна обчислити фазову діаграму залежності критичного значення енергії взаємодії адсорбату ϵ та потоку осадження F , що обмежують область параметрів (область II), коли поверхня зростатиме (див. рис. 8, *b*); в області I реалізується режим, коли поверхня не зростає.

Розглянемо процес зростання острівців, поклавши $v_\phi > 0$ при $F > F_c$. У такому випадку є єдиний стаціонарний однорідний стан, що визначається з рівнянь $\theta_0 = 1 + aFx_0$ і $F - \lambda x_0 / 2 = x_0 e^{-\epsilon x_0 / (1 + aFx_0)}$. Використовуючи у стандартний спосіб лінійний аналіз на стійкість, знаходимо відповідний показник стійкості та визначаємо інтервали значень a та v при фіксованих ϵ , F , та b , коли показник стійкості має дійсну та уявну частини. За умови від'ємної дійсної частини та ненульової уявної частини показника Ляпунова, реалізується осциляційна поведінка як середньої концентрації адсорбату, так і середньої температури поверхні [40]. На фазовій діаграмі на рис. 9, наведено критичні значення a та v , що обмежують область коливного режиму. Нижче кривих реалізується звичайна релаксація Дебая до стаціонарних значень x_0 і θ_0 . Зниження швидкості осадження F приводить до збільшення критичного значення v для підвищених a (суцільна та пунктирна криві). При збільшенні енергії взаємодії ϵ критичні значення v і a , що обмежують область реалізації осциляційної динаміки, набувають великих значень (див. штрих-пунктирну криву). Принципово важливим є те, що коливний режим можливий навіть при $b = 0$ (див. пунктирну криву). Тут критичні значення для v зменшуються, а інтервали

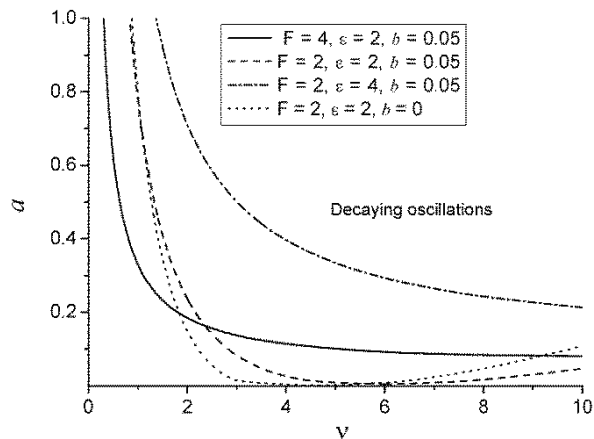


Рис. 9. Фазова діаграма реалізації коливного режиму при $\lambda = 10$. В області над кривими реалізується згасний осциляційний режим, в той час як під кривими реалізується релаксація Дебая.⁹

значень для a і v , коли реалізується коливний режим, звужується. Таким чином, в простому випадку, коли поверхня постійно зростає (осадження–розпорошення), врахування ненульового часу релаксації температури адсорбату приводить до реалізації осциляційної поведінки як $\langle x \rangle$, так і $\langle \theta \rangle$.

У наступному розділі в рамках процедури чисельного моделювання буде досліджено трикомпонентну систему. Буде розглянуто два випадки: малої швидкості осадження, $F < F_c$, що приводить до $\partial_t \langle \phi \rangle = 0$, та $F > F_c$, коли величина $\langle \phi \rangle$ зростає з часом.

4.2. Чисельний аналіз росту пірамідальних структур

Розглянемо динаміку формування структур шляхом чисельного розв'язку системи (14) на двовимірній ґратниці $L \times L$ з лінійним розміром $L = 512\ell$ та періодичними граничними умовами. При моделюванні використовувався крок за часом $\Delta t = 2,5 \cdot 10^{-4}$ та крок по ґратниці $\ell = 1$. За початкові умови обирався Гауссів розподіл поля $\phi(\mathbf{r}, 0)$ з $\langle \phi(\mathbf{r}, 0) \rangle = 0$ та $\langle (\delta\phi(\mathbf{r}, 0))^2 \rangle = 0,1$. За початкові умови для поля концентрації та температури використовувалися $x(\mathbf{r}, 0) = 0$ та $\theta(\mathbf{r}, 0) = 1$. Ілюстрації типової еволюції системи представлено на рис. 10 при $F > F_c$. Видно, що на початкових стадіях еволюції системи формуються малі острівці адсорбату. Тут поле температури може локально змінюватись внаслідок процесів адсорбції–десорбції. Під час еволюції системи такі острівці стають

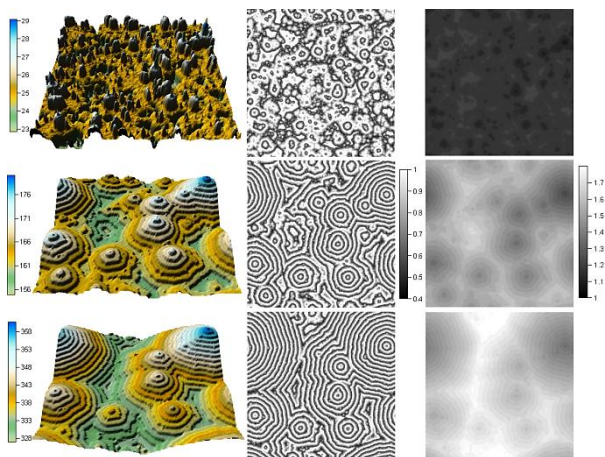


Рис. 10. Еволюція фазового поля (перший стовпчик), поля концентрації адатомів (другий стовпчик) та поля температури адсорбату (третій стовпчик) при $t = 5, 30$ та 60 (перший, другий і третій рядки відповідно). Інші параметри: $\varepsilon = 4$, $F = 4$, $v = 10$, $\chi = 10$, $\varpi = 2$, $\lambda = 10$, $a = 0,01$, $b = 0,05$.¹⁰

центрами пірамідальних структур та відповідні піраміди з'єднуються одна з одною терасами еквівалентної висоти (див. першу і другу колонки на рис. 8). Аналізуючи поведінку поля температури необхідно зауважити, що з часом температура збільшується, поки не досягне рівня, який відповідає рівновазі між газовою і твердою фазами. Як видно із третього стовпчика на рис. 8, температура набуває більш низьких значень на високих терасах пірамід в порівнянні з її значеннями на нижніх терасах.

Фізична причина цього полягає в наступному: на більш високому рівні піраміди внаслідок реконструкції поверхні адатоми починають організовувати новий рівень піраміди. Цей процес характеризується втратами енергії, що приводить до локального зниження температури в околі високого рівня піраміди або в безпосередній близькості до терас. На нижньому рівні піраміди температура набуває підвищених значень. Тут адсорбований атом локально збільшує температуру поверхні, але ця частина енергії не може бути ефективно перерозподілена у зв'язку з наявністю тераси великої площі та внаслідок того, що всі сходинки дуже розділені. Таким чином, вся кінетична енергія від приєднаних адатомів залишається на найнижчому рівні піраміди. Під час еволюції системи адатоми з більш теплих областей (від найнижчого рівня піраміди) десорбуються з великою ймовірністю, у той час як адатоми на високому рівні, що мають більш низькі температури, десорбуються з малою ймовірністю. Тому, якщо виникає будь-яка піраміда, то вона буде зростати з часом. Вона може бути захоплена іншими пірамідами з більш високим рівнем висоти, що описується полем ϕ .

Розглянемо детально динаміку системи, досліджуючи поведінку середніх $\langle x \rangle$, $\langle \theta \rangle$ та $\langle \phi \rangle$, типову часову залежність яких показано на рис. 11 при різних значеннях параметрів системи. У найпростішому випадку $F < F_c$ (рис. 11, а); тоді величина $\langle \phi \rangle$ досягає стаціонарного значення на ранніх стадіях еволюції системи і не змінюється на великих часових інтервалах. Таким чином, оскільки $\partial_t \langle \phi \rangle = 0$, то процеси росту не реалізуються. На ранніх стадіях середня концентрація $\langle x \rangle$ набуває від'ємних значень, що означає випарювання матеріалу з підкладки. Дана десорбція відповідає за зменшення середньої температури $\langle \theta \rangle$. На великих часових інтервалах температура системи T набуває значень еквівалентних до температури газової фази T_0 і, як наслідок, $\langle \theta(t \rightarrow \infty) \rangle = 1$, тоді як $\langle x(t \rightarrow \infty) \rangle$ набуває малого постійного значення, що характеризує осадження з газової фази. Цей результат добре узгоджується із результатами лінійного аналізу на стійкість при $v_\phi = 0$, що було зроблено в попередньому підрозділі.

При $F > F_c$ маємо більш складну картину еволюції системи. Тут середнє $\langle \phi \rangle$ представляється східчасто зростаючою функцією (вставка на верхній панелі рис. 11, б). Кожна сходинка відпові-

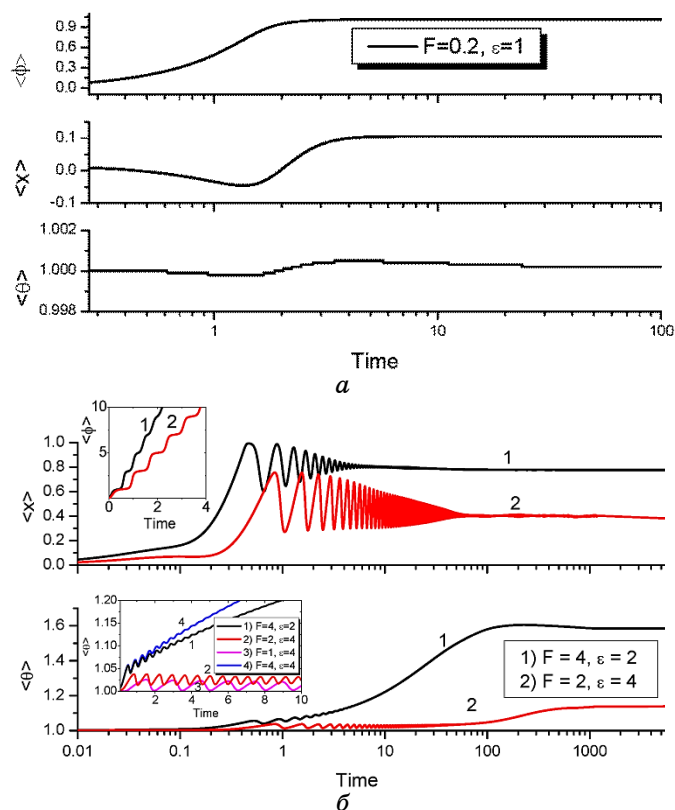


Рис. 11. Еволюція усередненого фазового поля, поля концентрації адсорбату і поля температури при різних значеннях ε та F : а) $F = 0,2$, $\varepsilon = 1$; б) 1 — $F = 4$, $\varepsilon = 2$ та 2 — $F = 2$, $\varepsilon = 4$. Інші параметри такі ж, як на рисунку 10.¹¹

дає за формування тераси. Завдяки немонотонній поведінці $\langle \phi \rangle$ середня концентрація адсорбату еволюціонує в осциляційний спосіб. Осциляційний характер $\langle x \rangle$ приводить до осциляцій середньої температури конденсату. При цьому, температура та концентрація проявляють однофазні осциляції. Це означає, що температура зменшується внаслідок десорбції–випаровування, та збільшується при осадженні. Видно, що осциляції мають різну інтенсивність затухання, яка залежить від параметрів системи.

Із вставки на нижній панелі рис. 11, б можна бачити, що період осциляцій збільшується з ростом потоку осадження F та слабо змінюється зі збільшенням енергії взаємодії адсорбату ε . Залежності частоти осциляцій ω від потоку осадження F при різних значеннях енергії взаємодії адсорбату ε показано на рис. 12. Видно, що з ростом потоку осадження частота осциляцій збільшу-

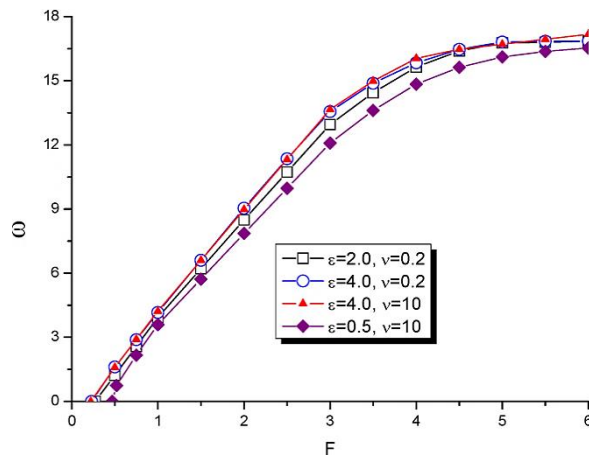


Рис. 12. Залежність частоти осциляцій ω від потоку осадження F за різних значень енергії взаємодії ε і часу релаксації поля температури ν .¹²

ється, тоді як варіація енергії взаємодії адсорбату та часу релаксації температури істотно не впливає на залежність $\omega(F)$.

Аналіз еволюції фазового поля уможливорює розрахувати критичні значення енергії взаємодії адсорбату ε і потоку осадження F , що обмежують область, коли реалізується осциляційна динаміка структуроутворення. Критичні значення параметрів системи, одержані з результатів числового моделювання, відповідають кривій, позначеній квадратиками на рис. 8, б.

Чисельні результати загалом повторюють аналітичні. Різниця між критичними значеннями, одержаними з аналітичних розрахунків, та з результатів числового моделювання пов'язана з використанням макроскопічної апроксимації в лінійному аналізі, що дає лише якісний результат.

Крім того, чисельний аналіз проводився для трикомпонентної моделі у той час, як аналітичні розрахунки було зроблено для двокомпонентної моделі.

4.3. Порівняльний аналіз двох моделей

Проведемо порівняльний аналіз процесів формування структур у двох випадках, що зводяться до стандартної моделі фазового поля (15) та узагальненої моделі фазового поля (14) для росту пірамідальних структур.

Спочатку розглянемо поведінку функції густини ймовірності для стандартної моделі, коли температура є сталою (див. рис. 13, а). У цьому випадку потік адсорбату, протилежний дифузійному потоку $-D\nabla x$, задається виразом $J_o = \varepsilon x(1-x)\nabla x$. Таким чином,

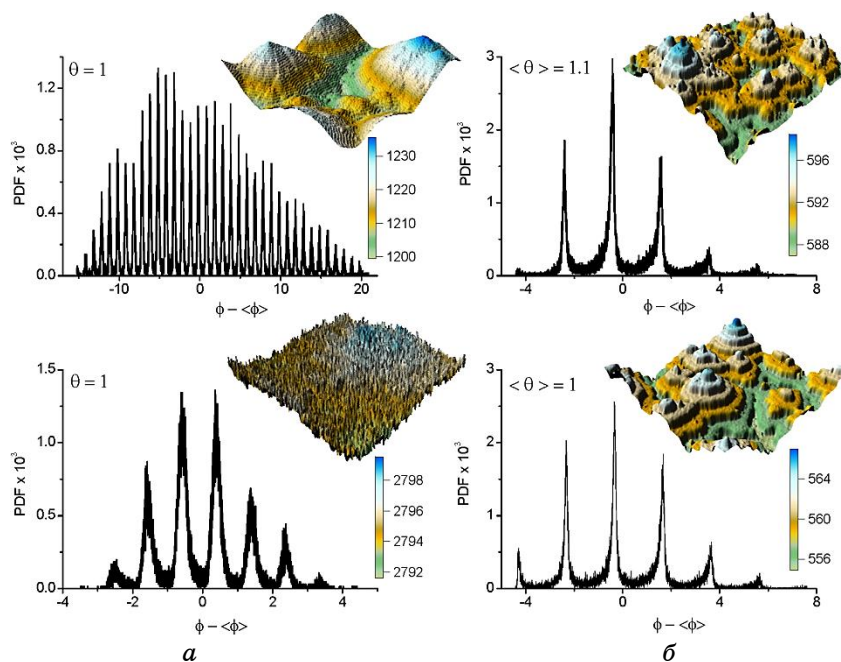


Рис. 13. Функції густини ймовірності фазового поля, розрахованого від середнього значення $\langle \phi \rangle$ при $F = 2$ та різних значень енергій взаємодії адсорбату ε для двох типів моделей: *а*) стандартної двокomпонентної моделі при фіксованій температурі; *б*) узагальненої моделі при змінному полі температури (середнє значення температури показано на рисунках). Верхній рядок відповідає випадку $\varepsilon = 4$; нижній рядок відповідає випадку $\varepsilon = 2$.¹³

варіяція енергії взаємодії адсорбату ε при постійному ε може розумітися як ефективна варіяція температури всієї системи.

З іншого боку, за умови фіксованої температури, варіяція ε означає варіяцію енергії ε (в залежності від типу матеріалу). При підвищених значеннях енергії взаємодії адсорбату ε в системі спостерігаються добре виражені пірамідальні структури острівців, коли відмінність у висотах на найвищому та найнижчому рівнях терас $\Delta_\phi \equiv \phi_{\max} - \phi_{\min}$ є високою: $\Delta_\phi = 30$. Тут реалізується велика кількість терас, що характеризуються малою шириною; висота сходинки є малою. Така структура пірамід є результатом взаємодії адсорбату. При малих ε (див. другий рядок на рис. 13, *а*) під час еволюції системи, коли досягається велика концентрація адатомів, процеси випаровування та дифузії починають відігравати визначну роль, що призводить до руйнування терас. Так, при малих значеннях енергії взаємодії адатомів ε останні не ма-

ють змоги взаємодіяти і, як наслідок, формувати пірамідальні структури з добре вираженими терасами ($\Delta_\phi \approx 6$); вони випаровуються чи дифундують по терасах. У такому випадку піки функції густини ймовірності пов'язані з різницею у висотах для Гауссової поверхні, але не з терасами.

Далі розглянемо функції густини ймовірності для узагальненої моделі епітаксіального росту при тих же значеннях потоку осадження F та енергії взаємодії адсорбату ε (тут $\varepsilon = \varepsilon / T_0$), що представлено на рис. 13, б. При підвищених значеннях ε середня температура конденсату набуває значень, більших ніж рівноважна температура ($\langle \theta \rangle = 1,1$). Це означає, що потік осадження ефективно збільшується, що в свою чергу має приводити до розупорядкованої Гауссової поверхні. Однак, вказана ситуація не реалізується. Дійсно, у такому разі маємо додатковий внесок до потоку адсорбату, що пов'язаний із термодинамічною силою. Цей внесок визначає рух адсорбату до межі терас і, як результат, приводить до формування пірамідальних структур при підвищених температурах. Тут різниця висот є високою — $\Delta_\phi \approx 12$; відповідна функція густини ймовірності характеризується невеликою кількістю добре виражених піків, що означає формування малої кількості добре виражених терас. Ці тераси характеризуються великою площею та великою різницею у висотах, порівняно із відповідним випадком стандартної моделі фазового поля. При малих значеннях ε маємо $\langle \theta \rangle \approx 1$. Тут внесок термодинамічної сили до потоку адсорбату приводить до аналогічної ситуації, а саме, до формування пірамідальних структур (у випадку стандартної моделі фазового поля даний ефект не спостерігається) з $\Delta_\phi \approx 10$. Таким чином, із одержаних результатів можна зробити висновок про те, що у випадку узагальненої моделі фазового поля механізм формування пірамідальних структур при низьких значеннях енергії взаємодії адсорбату пов'язаний з потоком адсорбату, що задається термодинамічною силою.

Як було показано у попередньому розділі, поверхнєве впорядкування для двох типів моделей може бути описано за допомогою кореляційної функції $C_0(r) = \langle (\phi(r_0 + r) - \langle \phi \rangle) \rangle \langle (\phi(r_0) - \langle \phi \rangle) \rangle$, що апроксимується виразом (19). Залежності кореляційних функцій при фіксованих значеннях потоку осадження подано на рис. 14. Спочатку розглянемо поведінку кореляційної функції для стандартної двокомпонентної моделі. При великих значеннях енергії взаємодії адсорбату ε реалізуються пірамідальні структури з великим значенням C_{\max} та кореляційною довжиною $\xi = 0,242$. У цьому випадку показник шерсткості набуває значення $\alpha \approx 1$, що означає формування добре організованої структури, яка характеризується

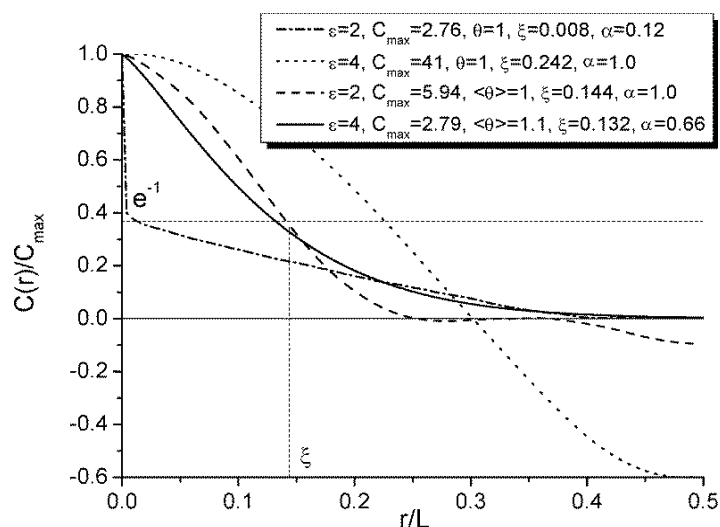


Рис. 14. Кореляційна функція для двох типів моделей при $F = 2$ та різних значеннях енергії взаємодії адсорбату ε .¹⁴

фрактальною розмірністю $D = 3 - \alpha \approx 2$. При малих значеннях ε кореляційна довжина прямує до 0 (вона набуває значень на декілька порядків менших, ніж у попередньому випадку) та кореляційна функція може бути наближено розглянута як Діракова дельта-функція з $\xi = 0,008$. У такому випадку її апроксимація у формі розтягнутої експоненти дає $\alpha \approx 0,12$, що означає формування зашумленої поверхні.

В узагальненому випадку трикомпонентної моделі кореляційна функція істотно не відрізняється при $\varepsilon = 2$ та $\varepsilon = 4$. Тут кореляційна довжина набуває менших значень при підвищених ε , ніж у випадку малої інтенсивності взаємодії адсорбату. Крім того, показник шерсткості набуває більших значень при $\varepsilon = 2$ у порівнянні з випадком, коли $\varepsilon = 4$. Іншими словами, поверхневі структури при малих ε характеризуються фрактальною розмірністю $D \approx 2$, тоді як при підвищених ε , маємо $D \leq 2$. Даний ефект може бути пояснено лише впливом термодинамічної сили, що задається потоком адсорбату на межі тераси.

5. УНІВЕРСАЛЬНІСТЬ ТА СКЕЙЛІНГОВІ ВЛАСТИВОСТІ

У даному підрозділі розглянемо скейлінгові властивості росту пірамідальних структур у процесах епітаксії при варіюванні часу релаксації поля температури, потоку осадження та енергії взаємодії адсорбату, досліджуючи показники шерсткості та росту

поверхні, закони росту середнього розміру структур адсорбату й зменшення кількості острівців з часом, а також розподіли структур адсорбату за розмірами.

5.1. Скейлінгові властивості морфології поверхні

Спочатку проаналізуємо статистичні властивості зростаючої поверхні. Відомо, що для будь-якої поверхні однією із характеристик, що мають прикладне значення, є шерсткість. Для зростаючої у часі поверхні можна простежити зміну шерсткості поверхні з часом. Для проведення дослідження шерсткості поверхні при зміні основних параметрів системи у подальшому розгляді ми будемо базуватися на кореляційному аналізі. Для цього дослідимо кореляційну функцію поля висоти поверхні $\varphi(r, t)$ у фіксований момент часу t у положенні r . Вона має вигляд:

$$C(r, t) = \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{1}{L} \int_0^L [\varphi(r + r', t) - \varphi(r', t)]^2 dr', \quad (21)$$

де L визначає ширину поверхні, а отже, і лінійний розмір системи. Згідно з роботами [46–48] можна розділити часову й просторову частини та представити дану кореляційну функцію у наступному вигляді [49]:

$$C(r, t) = r^{2\alpha} \psi\left(\frac{t}{r^z}\right), \quad (22)$$

де

$$\psi(v) \sim \begin{cases} v^{2\beta} & \text{при } v \ll 1, \\ \text{const} & \text{при } v \gg 1, \end{cases} \quad (23)$$

α — показник шерсткості; β — показник росту поверхні та $z \equiv \alpha / \beta$ — динамічний показник. Таким чином, для просторової частини кореляційної функції (21) маємо степеневу апроксимацію: $C(r) \propto r^{2\alpha}$.

Відомо, що існує декілька класів універсальності, що визначаються різною динамікою росту поверхні, для різних матеріалів та при різних умовах [50–55]. Серед них можна виділити чотири класи універсальності, що характеризуються відповідними наборами показників α , β та z .

1. Модель Кардара–Паризи–Жанґа для небережної динаміки [56]. Для цього класу відповідні показники шерсткості та росту поверхні для одновимірної задачі розраховані точно: $\alpha = 1/2$, $\beta = 1/3$, тоді як для двовимірного випадку наближені значення

$\alpha \approx 0,39$, $\beta = 0,24$ були одержані з використанням процедури числового моделювання [57]. Однак, у реальних експериментах щодо зростання поверхонь ці показники мають дещо більші значення.

2. Модель Едвардса–Вілкінсона для збережної динаміки процесів росту поверхні для систем «тверде тіло на тверде тіло» [58] у двовимірному випадку характеризуються нульовими значеннями відповідних показників: $\alpha = \beta = 0$, що означає пошарове зростання абсолютно гладкої поверхні.

3. Модель Муллінга–Херрінга для збережної динаміки. Для неї процеси поверхневої дифузії мають визначний характер [59, 60]. Відповідні показники шерсткості та росту одержані точно для двовимірної задачі: $\alpha = 1$, $\beta = 1/4$. Авторами [57] було показано, що у певній кількості експериментальних досліджень процесів епітаксіального росту поверхні ці показники знаходяться у відповідності з аналітичними результатами моделі Муллінга–Херрінга і мають значення $\alpha = 0,9-1$, $\beta \approx 0,25$.

4. Модель молекулярно-променевої епітаксії, відома також як модель Кардара–Паризи–Жанга для збережної динаміки, або модель Вілліяна–Лаї–Дас Сарма [57, 61]. Для двовимірної задачі цього класу відповідні показники мають значення $\alpha = 2/3$, $\beta = 1/5$ [61]. Ці дані добре узгоджуються з результатами, одержаними у багатьох експериментальних дослідженнях [57] та чисельних симуляціях, оснований на методах кінетичного Монте-Карло [53, 62]: $\alpha = 0,6-0,9$, $\beta \approx 0,2-0,3$.

У нашому випадку для типових поверхонь, що показані на рис. 2, відповідні показники шерсткості можуть бути знайдені за допомогою чисельного аналізу кореляційної функції висоти поверхні. Для цього кореляційну функцію (21) можна подати у вигляді

$$C(r, t_i) = \left\langle [\varphi(r + r', t_i) - \varphi(r', t_i)]^2 \right\rangle \quad (24)$$

та для фіксованих моментів часу t_i визначити показник шерсткості α_i як нахил кореляційної функції у подвійному логарифмічному масштабі. Відповідні залежності показника шерсткості від часу та кореляційні функції $C_i(r)$ наведено на рис. 15 при різних значеннях часу релаксації поля температури v . З рисунка видно, що у процесі росту поверхні показник шерсткості зростає з часом на ранніх стадіях еволюції системи, що відповідає реалізації процесів формування та руйнування пірамідальних структур на поверхні під час епітаксії. На пізніх стадіях, коли на поверхні сформувалися добре виражені пірамідальні структури, шерсткість поверхні залишається майже незмінною. Таким чином, зростаюча поверхня характеризується набором значень показника шерсткості $\{\alpha_i\}$. Крім того, аналіз кривих на рис. 15

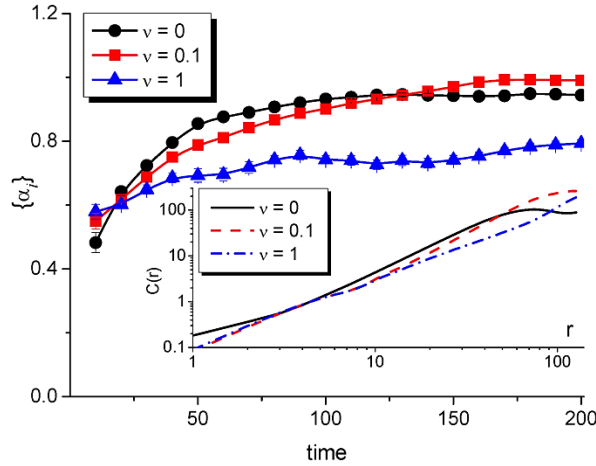


Рис. 15. Показники шерсткості $\{\alpha_i\}$ для випадку $F = 4$, $\varepsilon = 4$ та при різних значеннях часу релаксації поля температури ν . На вставці наведені відповідні кореляційні функції $C(r)$ при $t = 200$.¹⁵

показує, що шерсткість поверхні змінюється в залежності від часу релаксації поля температури. Врахування слабкої локальної зміни температури адсорбату істотно не впливає на шерсткість поверхні (пор. криву при $\nu = 0$ для випадку постійної температури та криву при $\nu = 0,1$, коли температура поверхні локально змінюється на порядок повільніше, ніж концентрація адатомів). У випадку, коли час релаксації температури співпадає з часом релаксації концентрації адатомів ($\nu = 1$), шерсткість поверхні на пізніх стадіях росту є меншою.

Розглянемо властивості процесу росту поверхні. Для визначення показників росту поверхні будемо розглядати часову поведінку середньоквадратичної флуктуації для висоти поверхні, що зростає з часом. У рамках динамічної масштабної гіпотези її залежність можна представити у наступному вигляді:

$$W(L, t) \sim L^\alpha \tilde{\psi}\left(\frac{L}{\rho(t)}\right), \quad (25)$$

де

$$W^2(t) = \left\langle \left[\phi(r, t) - \langle \phi(r, t) \rangle_r \right]^2 \right\rangle. \quad (26)$$

Тут $\langle \phi(r, t) \rangle_r$ — середня товщина плівки в момент часу t , що лінійно зростає з часом: $\langle \phi(r, t) \rangle_r = Ft$. Кореляційна довжина $\rho(t)$ зростає з часом за степеневим законом: $\rho(t) \propto t^{1/2}$. Функція масш-

табування $\tilde{\psi}(y)$ задовольняє наступним асимптотикам:

$$\tilde{\psi}(y) \sim \begin{cases} y^{-\alpha} & \text{при } y \ll 1, \\ \text{const} & \text{при } y \gg 1. \end{cases} \quad (27)$$

Для часової поведінки середньоквадратичної флуктуації $W(L, t)$ маємо наступні асимптотики:

$$W(L, t) \sim \begin{cases} t^\beta & \text{при } t \ll L^z, \\ L^\alpha & \text{при } t \gg L^z. \end{cases} \quad (28)$$

Таким чином, відповідно до скейлінгового опису, величина $W^2(t)$ для зростаючої поверхні спочатку буде зростати з часом за степеневим законом: $W^2(t) = \langle [\phi - \langle \phi \rangle]^2 \rangle \propto t^{2\beta}$, після чого на великих часових масштабах стане постійною величиною.

Часові залежності $W^2(t)$ та відповідні показники росту в різні проміжки часу показано на рис. 16 при різних значеннях часу релаксації поля температури та фіксованих значеннях інших параметрів системи. Із вставки на рис. 16 у подвійному логарифмічному масштабі видно, що в процесі еволюції системи величина $W^2(t)$ еволюціонує за степеневим законом; на великих часових масштабах вона набуває стаціонарного значення. Таким чином, зростаюча з часом поверхня характеризується набором значень показника росту $\{\beta_i\}$. Аналогічна ситуація спостерігалася і в процесі йонно-променевого розпорошення поверхонь (див. [8, 9]). З рисунку 16 видно, що показник росту β_i спочатку збільшується з часом, а після досягнення максимального значення — спа-

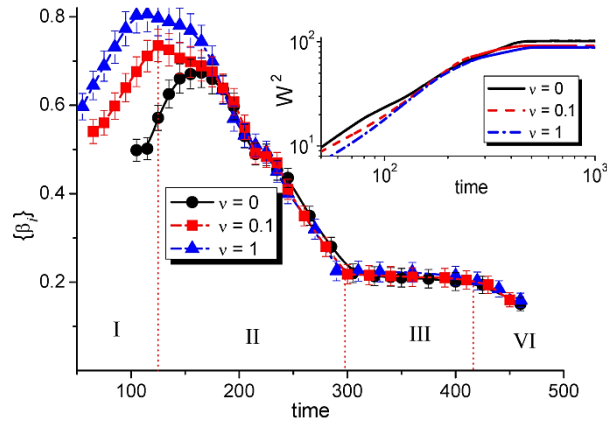


Рис. 16. Часова залежність показників росту $\{\beta_i\}$ для випадку $F = 4$, $\varepsilon = 4$ та при різних значеннях часу релаксації поля температури ν . Залежності $W^2(t)$ наведено на вставці.¹⁶

дає. На залежності показника росту від часу можна виділити чотири характерні часові інтервали (див. криву для $\nu = 0,1$). На ранніх стадіях еволюції системи показник β_i зростає з часом (область I), що відповідає процесам формування пірамідальних острівців на поверхні. Зменшення показника росту з часом (область II) відповідає процесам коалесценції, коли великі піраміди поглинають малі. Наступна стадія (область III) характеризується універсальною поведінкою $W^2(t)$, коли показник росту β не залежить від часу. Цей процес відповідає росту великих пірамідальних структур на поверхні. Область IV характеризується зменшенням показника росту. Тут в ході еволюції системи кількість пірамідальних структур зменшується внаслідок коалесценції і на великих часових інтервалах одна велика пірамідальна структура заповнить всю поверхню, що приведе до $\beta \rightarrow 0$. Зі збільшенням часу релаксації поля температури ν процеси росту поверхні стають більш вираженими: поверхня росте швидше і максимальне значення показника росту зміщується в бік малих часів. На пізніх стадіях ν не впливає на показник росту.

Одержані значення показників шерсткості та росту поверхні на універсальних часових інтервалах зміни кореляційної функції добре узгоджуються із експериментальними та числовими даними Монте-Карло для процесів епітаксіального росту [53, 62].

5.2. Скейлінгові властивості процесу росту острівців

Одним із важливих питань при дослідженні процесів формування відокремлених структур є встановлення закону росту їх розміру. У даній моделі епітаксіального росту цей закон може бути одержаний чисельно з використанням методу перколювального кластеру. Однак, як було зазначено вище, під час еволюції системи пірамідальні структури постійно зростають з часом, а отже, і середня висота поверхні лінійно зростає із часом за законом, $\langle \phi \rangle = Ft$. За таких умов числова процедура, що уможливорює одержати закон росту середнього розміру острівців з часом та закон еволюції середньої кількості острівців, є наступною. У виділений момент часу t_i розраховується середня висота поверхні $\langle \phi \rangle$ у стандартний спосіб. Далі, на даному рівні $\langle \phi \rangle$ за допомогою методу перколювального кластеру визначається повна кількість острівців адсорбату та відповідний середній розмір (у нашому випадку — площа) острівців.

Залежності середньої кількості острівців $\langle N \rangle$ та перенормованої середньої площі острівців $\langle s \rangle / L^2$ на середній висоті зростаючої поверхні $\langle \phi \rangle$ від часу для різних значень часу релаксації поля температури ν та фіксованих інших параметрах системи показано на рис. 17 у подвійному логарифмічному масштабі. Тут наведено ре-

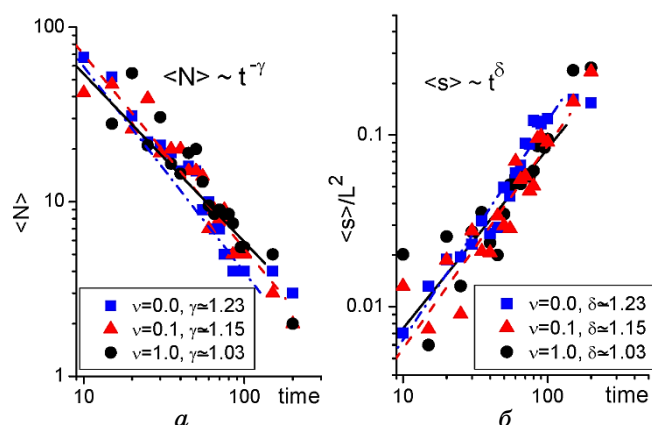


Рис. 17. Еволюція а) середньої кількості пірамідальних структур і б) середньої площі пірамідальних острівців на середній висоті поверхні при $F = 4$, $\varepsilon = 4$ та за різних значень часу релаксації поля температури ν .¹⁷

зультати на часових масштабах, коли реалізуються процеси росту пірамідальних структур. З рисунка видно, що числові дані, представлені символами, добре узгоджуються із апроксимаціями степеневими залежностями, а саме, $\langle N \rangle \propto t^{-\gamma}$ та $\langle s \rangle \propto t^{\delta}$ з $\gamma, \delta > 0$, відповідно, що показано лініями. Аналіз даних залежностей показує, що на середній висоті поверхні $\langle \phi \rangle$ на малих часах спочатку реалізується приблизно 50 малих відокремлених пірамідальних острівців. З часом кількість пірамідальних структур зменшується за степеневим законом $t^{-\gamma}$, і набуває значення $\langle N \rangle = 1$, що означає формування єдиного перколювального кластеру на середньому рівні висоти поверхні, а отже, формування однієї великої пірамідальної структури (рис. 17, а). Середня площа острівців адсорбату на середній висоті поверхні $\langle \phi \rangle$ зростає з часом за степеневим законом (див. рис. 17, б). Спочатку середня площа острівців $\langle s \rangle$ займає приблизно 1% від загальної площі системи (обчислюваної ґратниці). На великих часових інтервалах один острів займає площу близько 40% від загальної. З рисунків 17, а і 17, б випливає, що збільшення часу релаксації поля температури приводить до уповільнення динаміки росту середнього розміру острівців.

Вплив потоку осадження та енергії взаємодії адатомів на динаміку кількості відокремлених острівців та середній розмір острівців наведено на рис. 18. Видно, що збільшення потоку осадження F пришвидшує процес росту середньої площі острівців на середній висоті поверхні, тоді як енергія взаємодії адатомів впливає протилежним чином, приводячи до уповільнення відповідних процесів, коли ε приймає підвищених значень, достатніх для реалізації процесів формування пірамідальних структур при

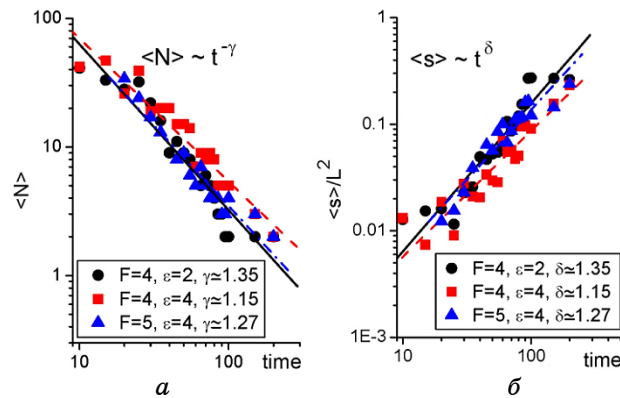


Рис. 18. Еволюція а) середньої кількості пірамідальних структур і б) середньої площі пірамідальних острівців на середній висоті поверхні при $\nu = 0,1$ за різних значень потоку осадження F та енергії взаємодії адсорбату ϵ .¹⁸

епітаксіальному рості.

Із проведеного аналізу динаміки росту середнього розміру (площі на середній висоті) пірамідальних острівців і динаміки спадання кількості острівців можна зробити наступні висновки.

1. Кількість пірамідальних острівців, що формуються у процесі епітаксіального росту, спадає з часом за степеневим законом; середня площа пірамідальних острівців на середній висоті поверхні зростає з часом за степеневим законом.

2. Степеневі закони $\langle N \rangle \propto t^{-\gamma}$ та $\langle s \rangle \propto t^{\delta}$, де $\delta / \gamma \approx 1$ є інваріантними до зміни основних параметрів системи, а саме, часу релаксації поля температури ν , потоку осадження F та енергії взаємодії адсорбату ϵ .

3. Показник росту середнього розміру острівців (спадання кількості острівців) можна контролювати за допомогою F , ϵ та ν .

5.3. Універсальна поведінка розподілу острівців за розмірами

Наступним кроком у дослідженні скейлінгової поведінки системи є визначення вигляду густини розподілу пірамідальних структур, що реалізуються у процесі епітаксіального росту, за розмірами. Для проведення таких досліджень лінійний розмір системи було збільшено удвічі, а саме, до $L = 1024\ell$. Кроки за ґратницею та за часом не змінювалися. У попередньому розділі ми показали, що у даній моделі епітаксіального росту середня кількість пірамідальних острівців і відповідний середній розмір (площа) острівців еволюціонують за степеневими залежностями: $\langle s \rangle \propto t^{\gamma}$ і $\langle N \rangle \propto t^{-\gamma}$

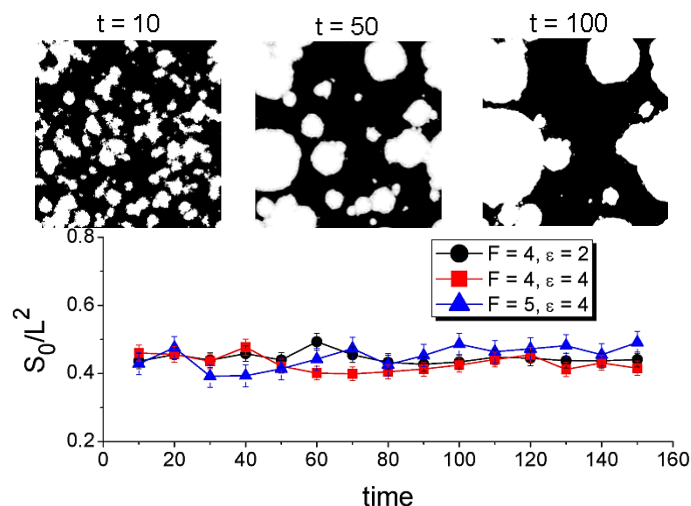


Рис. 19. Ілюстрації перерізів поверхонь на середній висоті при $F = 4$, $\varepsilon = 4$, $\nu = 0,1$ на різних часах еволюції системи та залежності загальної площі, зайнятої адсорбатом на середній висоті при $\nu = 0,1$.¹⁹

(оскільки $\delta \approx \gamma$). З цього випливає, що зв'язок між кількістю острівців і середнім розміром дається алгебраїчною залежністю у вигляді закону Ципфа: $N(s) \propto s^{-1}$. Крім того, слід зазначити, що дані залежності передбачають, що повна площа, яку займають всі острівки, S_0 на середній висоті поверхні має залишатися незмінною з часом. Вона визначається стандартним чином: $S_0 = \int_0^\infty sN(s)ds = \text{const}$; середня висота лінійно зростає з часом: $\langle \varphi \rangle = Ft$. Часові залежності повної площі, зайнятої острівцями адсорбату з відповідними двовимірними ілюстраціями на середній висоті на різних часових інтервалах представлено на рис. 19. З рисунка видно, що в рамках похибки обчислень площа, зайнята усіма острівцями адсорбату, S_0 залишається незмінною з часом та є інваріантною до зміни основних параметрів системи.

Спочатку проаналізуємо ймовірність розподілу структур адсорбату за розмірами. Одержані результати наведено на рис. 20 символами на різних часах еволюції системи (рис. 20, а), при зміні часу релаксації поля температури (рис. 20, б) та зміні потоку осадження та енергії взаємодії адсорбату (рис. 20, в). Відповідний універсальний інтервал для кожної залежності апроксимовано логарифмічною залежністю $P(s) = C_0 + C_1 \ln(s)$, де C_0 та C_1 — апроксимаційні параметри. Розглянемо спочатку зміну ймовірності з часом (див. рис. 20, а). З рисунка видно, що для невеликих

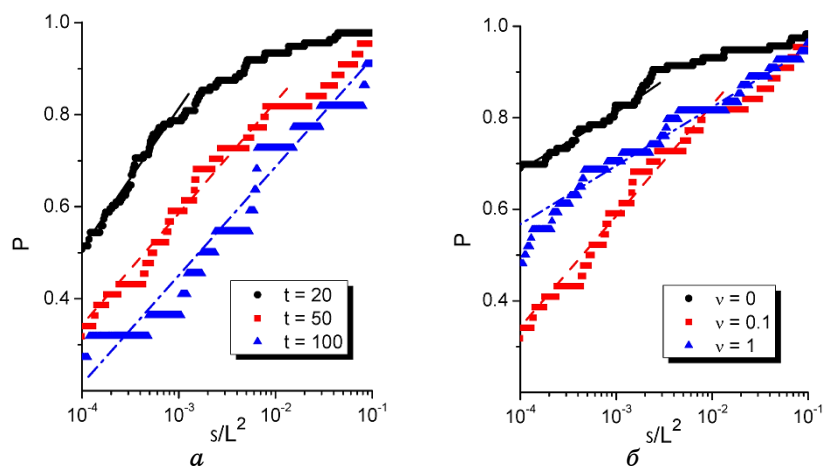


Рис. 20. Залежності ймовірності P від середньої площі острівця при: (а) $\varepsilon = 4$, $F = 4$, $\nu = 0,1$ на різних часах еволюції системи; (б) $\varepsilon = 4$, $F = 4$, $t = 50$ та різних значеннях часу релаксації поля температури ν ; (в) $\nu = 0,1$, $t = 50$ та різних значеннях енергії взаємодії адсорбату ε та потоку осадження F . Чисельні дані представлено символами, відповідні апроксимації $P(s) = C_0 + C_1 \ln(s)$ на універсальних інтервалах наведено лініями.²⁰

значень площі острівця чисельні дані добре узгоджуються з аналітичною апроксимацією відповідним логарифмічним законом. Крім того, інтервал значень площі острівця s , де реалізується вказана відповідність, збільшується зі збільшенням часу: параметр C_0 зменшується з часом, тоді як C_1 залишається незмінним. З рисунків 20, б та 20, в видно, що ймовірність розподілу структур за розмірами є інваріантною до зміни як часу релаксації поля температури ν (рис. 20, б), так і до зміни потоку осадження F й енергії взаємодії адсорбату ε (див. рис. 20, в). Обидва апроксимаційні параметри логарифмічного закону C_0 та C_1 залежать від цих параметрів, тоді як інтервал значень площі острівця, де реалізується логарифмічний закон, істотно не змінюється.

З одержаних апроксимаційних залежностей для ймовірності розподілу структур за розмірами маємо, що густина ймовірності $p(s)$, як похідна від ймовірності: $p(s) = dP(s) / ds$, задовольняє згаданому вище закону Ципфа: $p(s) \propto s^{-1}$.

На рисунку 21 наведено залежності середньої кількості острівців $\langle N \rangle$ від середньої площі острівця $\langle s \rangle$, одержані з залежностей $\langle N(t) \rangle$ і $\langle s(t) \rangle$ на різних часах еволюції системи при різних значеннях потоку осадження й енергії взаємодії адсорбату. Видно, що числові дані добре апроксимуються алгебраїчною залежністю незалежно від параметрів системи і відповідають закону Ци-

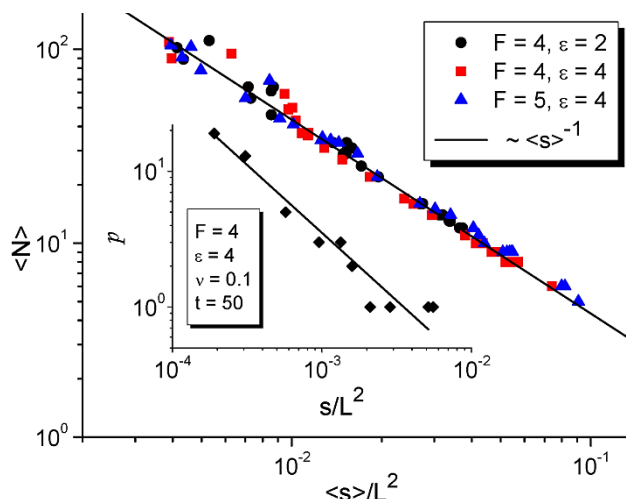


Рис. 21. Залежності середньої кількості острівців від середньої площі острівців на різних часах еволюції системи при $\nu = 0,1$. Густина ймовірності розподілу структур за розмірами $p(s)$ при $\epsilon = 4$, $F = 4$, $\nu = 0,1$ та $t = 50$ представлено на вставці.²¹

пфа: $\langle N \rangle \propto \langle s \rangle^{-1}$. На вставці до рис. 21 наведено результати безпосереднього обчислення залежності густини ймовірності розподілу структур за розмірами $p(s)$ згідно стандартної процедури, де також маємо добру відповідність числових даних залежності $p(s) \propto s^{-1}$.

Таким чином, у даній моделі епітаксіального росту на середньому рівні висоти поверхні середня кількість острівців адсорбату зменшується з часом за степеневим законом і алгебраїчним чином залежить від середньої площі острівця адсорбату.

З одержаних залежностей для густини ймовірності розподілу пірамідальних структур випливає, що на середньому рівні висоти поверхня буде характеризуватися великою кількістю малих острівців адсорбату та одним великим островом. Така ситуація унеможливує визначення найбільш ймовірного розміру острівця адсорбату. Це пов'язано з тим, що на середньому рівні висоти поверхні лише найбільша пірамідальна структура буде перерізна на половині висоти, деякі структури будуть перерізані на рівні, що перевищує їх половину висоти, а малі піраміди, висота яких менша за середній рівень висоти поверхні, взагалі не враховуються при знаходженні густини ймовірності розподілу структур за розмірами. У такому випадку густина ймовірності на рис. 21 не має піку, а отже, і не дає жодної інформації щодо найбільш ймовірного значення розміру острівця адсорбату.

З фізичної точки зору розподіл структур за розмірами завжди

характеризується найбільш ймовірним значенням розміру, що вимірюється в реальних експериментах. Тому далі розглянемо розподіл структур за розмірами за умови перетину кожної структури на рівні, що відповідає половині її висоти. Крім того, будемо використовувати припущення, що на рівні половини висоти переріз кожної пірамідальної структури має форму кола. Процедура визначення такого розподілу структур за розмірами є наступною. Спочатку на фіксованому часі еволюції системи визначимо рівень половини висоти найбільшої пірамідальної структури $h = (\varphi_{\max} - \varphi_{\min}) / 2$, де φ_{\min} — мінімальний рівень висоти, що є незмінним для всієї поверхні на даному фіксованому часі. На визначеному рівні висоти розраховуємо площу перерізу максимальної пірамідальної структури s_{\max} . Вважаючи, що даний переріз має форму кола, визначимо зенітний кут (кут нахилу піраміди) стандартним чином: $\tan(\gamma) = h / \sqrt{s_{\max} / \pi}$. Далі, вважаючи що на даному фіксованому часі еволюції всі пірамідальні структури, що є на поверхні, характеризуються одним значенням $\tan(\gamma)$, яке визначається основними параметрами системи, визначаємо рівень половини висоти кожної пірамідальної структури h_i , що реалізується на поверхні, та, використовуючи відоме $\tan(\gamma)$, розраховуємо радіуси перетинів всіх пірамід на відповідних рівнях h_i . В результаті одержуємо розподіл структур $f(R / \langle R \rangle)$ за лінійним розміром (радіусом) R , де $\langle R \rangle$ — середній радіус перерізу піраміди при фіксованих значеннях параметрів на певному часі еволюції системи. Залежності $f(R / \langle R \rangle)$ на різних значеннях часу еволюції системи подано на рис. 22, а. Числові дані представлено символами; суцільна лінія відповідає апроксимаційній кривій. З одержаних результатів випливає, що даний розподіл структур за розмірами є універсальним і не залежить від часу. Числові дані добре апроксимуються лог-нормальним розподілом для змінної $x \equiv R / \langle R \rangle$ [63]:

$$f(x; \mu, \sigma) = \frac{1}{x\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(\ln x - \mu)^2}{2\sigma^2}},$$

де μ та σ — апроксимаційні параметри. Вплив основних параметрів системи, а саме, часу релаксації поля температури v , потоку осадження F та енергії взаємодії адсорбату ε на розподіл структур за розмірами представлено на рис. 22, б, де криві відповідають апроксимації лог-нормальним розподілом числових даних. З рисунка видно, що даний розподіл є інваріантним до зміни вказаних параметрів, тоді як апроксимаційні параметри μ та σ за-

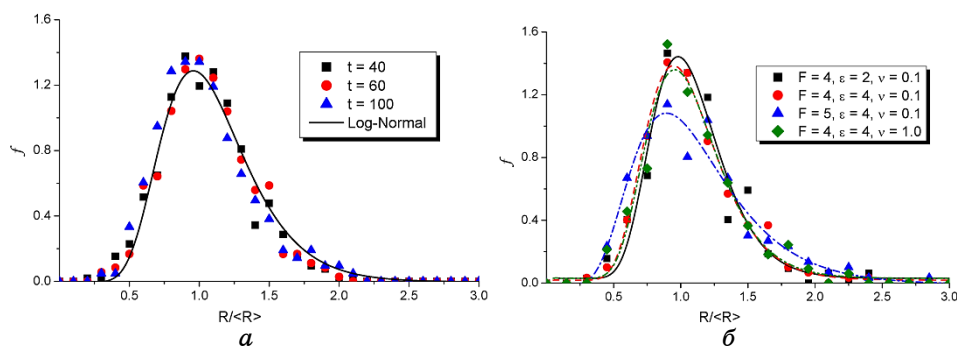


Рис. 22. Залежності густини розподілу структур за радіусами, розраховані на рівні половині висоти кожної пірамідальної структури: а) на різних значеннях часу еволюції системи при $F = 4$, $\varepsilon = 4$, $v = 0.1$; б) при $t = 100$ та різних значеннях параметрів системи.²²

лежать від параметрів системи.

Із стандартного термодинамічного підходу можна оцінити середній радіус острівців [64]. Використовуючи вираз для вільної енергії для острівця розміром R , маємо $\Delta F = 2\pi\gamma R - \pi\Delta\mu R^2$, де $\Delta\mu \equiv (c - c_{eq}^0) / Tc_{eq}$ визначає різницю у хімічних потенціалах і відповідає за пересичення. Густина адатомів може бути оцінена у наступний спосіб: $x \approx F\tau_{0x}$. У такому разі бар'єр нуклеації $\Delta F(R_c) = \pi\gamma^2 / \Delta\mu$. Отже, при $\Delta F(R_c) < T$ можливим є формування терас. Оскільки $\Delta\mu \propto x$, то при низькому значенні пересичення або при $F < F_c$ протягом еволюції системи формування острівців із терасами є неможливим. У протилежному випадку, коли пересичення велике, формуються острівці із пірамідальною структурою. В останньому випадку можна оцінити величину середнього розміру острівців. Оцінка для коефіцієнту дифузії дає $D \approx 2,7 \cdot 10^{-6} \text{ см}^2/\text{с}$. Значення часового масштабу випаровування варіюється в інтервалі $\tau_{0x} \approx 10^{-3} - 10^{-2} \text{ с}$ і залежить від властивостей матеріалу. Отже, фізичний час осадження складає приблизно від 1 до 10 хвилин. Процес росту острівців реалізується в інтервалі $10^1 - 10^2 \text{ с}$. Дифузійна довжина набуває значень в околі $L_d \approx 1,6 \cdot 10^{-6} \text{ м}$, що уможливило оцінити повний розмір системи: $L \approx 100L_d \approx 10^{-4} \text{ м}$. Залежність середнього розміру острівців, що визначається на половині висоти кожної піраміди в одиницях L_d , від часу представлено на рис. 23. Видно, що середній радіус острівця адсорбату $\langle R \rangle$ зростає з часом і набуває значень в інтервалі

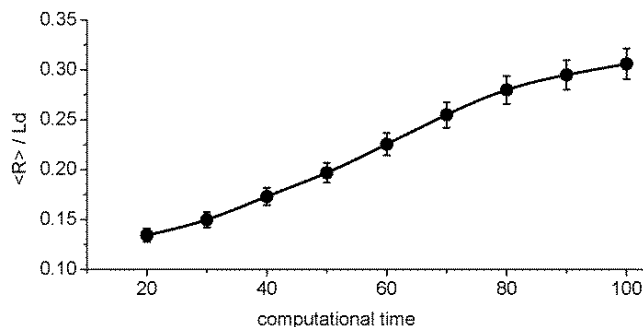


Рис. 23. Типова залежність середнього розміру острівців адсорбату в одиницях дифузійної довжини від часу.²³

100–400 нм.

5.4. Узагальнений кінетичний підхід до розподілу структур за розмірами

Для того щоб аналітично описати одержані чисельно результати щодо універсальної поведінки густини розподілу структур за розмірами (площею) за умови виконання умови незмінності загальної площі, зайнятої всіма острівцями, з часом, будемо базуватись на підході нелінійного рівняння Фоккера–Планка [65]. Оскільки площа острівця зростає дифузійним чином (внаслідок приєднання–від’єднання взаємодійних атомів) будемо стартувати з нелінійного дифузійного рівняння для кількості острівців $N(s, t)$, записаного у вигляді

$$\partial_t N = \nabla_s [D(N) \nabla_s N], \quad (29)$$

де $\nabla_s \equiv \partial / \partial s$, узагальнений коефіцієнт дифузії беремо у степеневій формі $D(N) = D_0 N^{1-Q}$ ($D_0 = \text{const}$), Q — показник Цалліса [66]. Для одержання відповідного розв’язку розглянемо систему в автономному режимі, поклавши: $s(t) = a(t)y$, $N(s, t) = a^\rho \phi(y)$, де $a(t)$ — масштабна функція, що визначає розбіжність дифузійного пакету. Використання умови нормування та закону збереження загальної площі острівців дає $\rho = -2$. Підставляючи вищенаведені вирази до рівняння (29), можна розділити часовозалежну частину та частину, залежну від просторової змінної y , у вигляді:

$$\dot{a} a^{1+2(1-Q)} = \lambda_0; \quad -\lambda_0 \phi = [\lambda_0 y \phi + \phi^{1-Q} \phi']'. \quad (30)$$

Тут λ_0 — константа, що пов’язана із часовою залежністю. З першого рівняння одержуємо зв’язок між параметром Цалліса Q та

показником δ , що визначає швидкість росту середньої площі острівців, $\langle s(t) \rangle \propto t^\delta$, у вигляді:

$$\delta = [2(2 - Q)]^{-1}. \quad (31)$$

Для розв'язання другого рівняння припустимо його розв'язок у формі Цалліса: $\phi(y) = \left[C_0 - \frac{1-Q}{D_0 \kappa} y^\kappa \right]^{1/(1-Q)}$, де C_0 , κ — константи, які мають бути визначені. Використовуючи зв'язок $\phi' = -D_0^{-1} y^{\kappa-1} \phi^Q$, підставляючи його в рівняння для ϕ , приходимо до алгебраїчного рівняння, розв'язок якого має наступний вигляд:

$$\phi(y) = \left[\frac{y^\kappa \left(1 - \frac{y^{\kappa-2}}{D_0 \lambda_0} \right)}{2 - \frac{(\kappa-1)}{D_0 \lambda_0} y^{\kappa-2}} \right]^{\frac{1}{1-Q}}. \quad (32)$$

Для подальшого розгляду будемо вважати $1/D_0 \lambda_0$ малою величиною теорії. Таке припущення уможливіє одержати розв'язок для густини ймовірності у вигляді $\phi \propto y^{-1}$ за умови $C_0 = 0$ та $\kappa = Q - 1$. У такому разі розподіл структур за розмірами набуває вигляду [67]:

$$N(s, t) \approx \left(\frac{t_0}{t} \right)^{\frac{1}{2(2-Q)}} \frac{s_0}{s}, \quad (33)$$

де t_0 та s_0 залежать від D_0 та визначаються через умову нормування. Звідси маємо, що в залежності від параметра Цалліса Q реалізуються різні динамічні режими для росту площі острівця, тоді як відповідний розподіл структур за площею залишається універсальним і не залежить від параметра Q . Згідно зі зв'язком (31) параметр Цалліса змінюється в інтервалі $1 \leq Q < 2$. Для процесу нормального росту острівців, що характеризується значенням $\delta = 1$, маємо $Q = 3/2$. Отже уповільнена динаміка росту площі острівця адсорбату ($\delta < 1$) характеризується значеннями параметра Цалліса $Q \in [1, 3/2)$, тоді як в умовах пришвидшеного росту площі острівця, що представлено на рисунках 17 і 18, параметр Цалліса змінюється в інтервалі $Q \in (3/2, 2)$.

Використовуючи розвинутий формалізм нелінійного дифузійного рівняння для кількості острівців адсорбату $N(s, t)$, ми можемо записати відповідне Ланжевенівське рівняння у наступному вигляді [68, 69]:

$$\frac{ds}{dt} = \sqrt{D(N(s, t))} \xi(t) \equiv \left(t^{\frac{1}{2(2-Q)}} s(t) \right)^{\frac{Q-1}{2}} \xi(t), \quad (34)$$

де $\xi(t)$ — білий Гауссів шум із стандартними властивостями. Використовуючи його формальний розв’язок разом із корелятором $\langle \xi(t)\xi(t') \rangle = \kappa(t-t')$, в автомодельному режимі одержуємо $\langle (s(t) - s(0))^2 \rangle \propto t^{2\delta(Q-1)+1}$. Порівнюючи даний вираз із апіорі відомим $\langle (s(t) - s(0))^2 \rangle \propto t^{2\delta}$, приходимо до зв’язку (31). Далі порівняємо одержані аналітичні результати із даними числового розв’язання Ланжевенівського рівняння (34). Результати подано на рис. 24. З рисунку 24, а видно, що результати числового моделювання для $\langle s^2(t) \rangle$ добре узгоджуються із аналітичним результатом та відповідають залежностям $\langle s^2(t) \rangle \propto t^{\delta_n}$, де δ_n — апроксимаційний параметр. При розв’язанні Ланжевенівського рівняння (34) фіксувалося значення параметра Цалліса Q . Апроксимація даних числового моделювання показала, що в рамках похибки

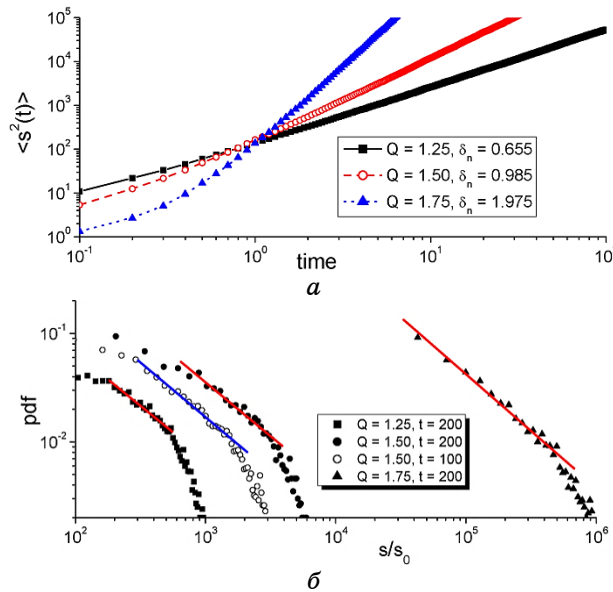


Рис. 24. Часова еволюція другого моменту (а) та відповідні залежності густини ймовірності (б) на різних часах (пусті та темні кружки) при фіксованих значеннях параметра Q та при фіксованому часі $t = 200$ та різних значеннях Q .²⁴

обчислень δ_n збігається із аналітичним значенням δ з (31): $\delta(Q) \approx \delta_n(Q)$. Відповідні залежності густини розподілу кількості острівців адсорбату за площею наведено на рис. 24, б. Бачимо, що незалежно від часу (див. білі та темні кружки) та параметру Цалліса на одержаних залежностях можна виділити універсальний часовий інтервал, де реалізується відповідність аналітичному закону s^{-1} . Збільшення часу еволюції та параметру Цалліса (перехід до умов пришвидшеного росту площі острівця адсорбату з $\delta > 1$) приводить до зсуву відповідного універсального часового інтервалу в бік великих значень.

Далі проаналізуємо часові ряди $s(t)$, одержані як розв'язок Ланжевенівського рівняння (34), за допомогою мультифрактального флуктуаційного аналізу з видаленням тренду (multifractal detrended fluctuation analysis) [70], що є узагальненням стандартної мультифрактальної теорії [71]. Згідно з даним підходом можна одержати фрактальні показники $h(q)$ та сингулярний спектр $f(\alpha) = q[\alpha - h(q)] + 1$ для мультифракталів, де $\alpha = h(q) + qh'(q)$ — рівень сингулярності; q — показник мультифрактальності. Відомо, що величина $h(q=2)$ відповідає показнику Херста $0 \leq H \leq 1$, що характеризує гладкість часового ряду [72] та визначає фрактальну розмірність часового ряду: $D_f = 2 - H$ [71]. Еволюцію похідної $ds(t)/dt$ при різних значеннях параметра Цалліса Q показано на рис. 25, а. Відповідні залежності $f(\alpha)$ та $h(q)$ представлено на рис. 25, б. З рисунка видно, що при $Q \geq 1$ відповідна часова залежність похідної $ds(t)/dt$ характеризується слабкими варіаціями в околі $h(q) \approx 1/2$ та вузьким спектром $f(\alpha)$, що означає слабку мультифрактальність часового ряду. Іншими словами, при $Q \geq 1$ флуктуації $ds(t)/dt$ мають Гауссів розподіл. При підвищених значеннях Q відповідний часовий ряд є

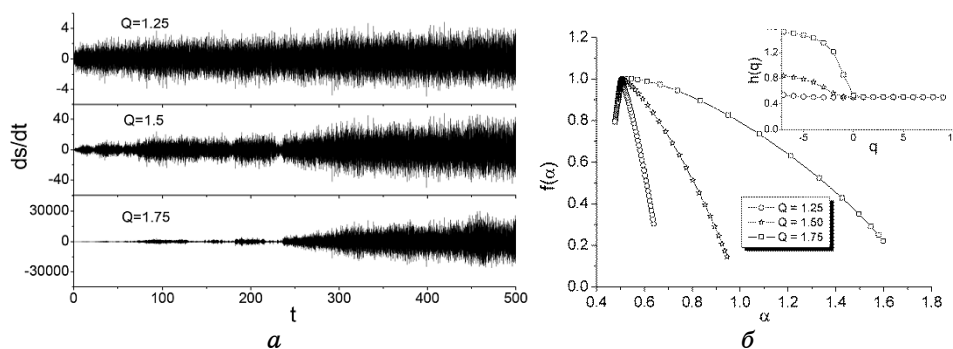


Рис. 25. (а) Еволюція похідної $ds(t)/dt$ при різних значеннях параметра Цалліса Q ; (б) спектри сингулярності $f(\alpha)$ та залежності $h(q)$.²⁵

мультифрактальним і характеризується широким спектром $f(\alpha)$. З одержаних залежностей випливає, що фізичною причиною мультифрактальності є кореляції часового ряду.

6. ВИСНОВКИ

Процеси формування пірамідальних структур при епітаксіальному рості матеріалів досліджено із використанням узагальненої теорії фазового поля з урахуванням процесів взаємодії адатомів і локальної зміни температури адсорбату, викликані процесами адсорбції–десорбції і внаслідок формування структур адсорбату.

В рамках моделі, коли локальні зміни температури адсорбату є неістотними (типовим прикладом є метали), у розгляд уведено флуктуації повного потоку адатомів, що складається із звичайного дифузійного потоку та потоку, пов'язаного із взаємодією адатомів. Динаміку системи та статистичні властивості пірамідальних структур адсорбату досліджено при зміні потоку осадження, енергії взаємодії адсорбату та інтенсивності флуктуацій. Показано, що за підвищених значень енергії взаємодії адсорбату на поверхні формуються пірамідальні структури, тоді як при малій енергії взаємодії добре виражених структур не реалізується, що пов'язано з високою ймовірністю випаровування адатомів з поверхні. Показано, що при малих значеннях енергії взаємодії адсорбату зростаюча поверхня є майже Гауссовою та відповідний розподіл є симетричним відносно середнього. Розподіл за висотами добре виражених пірамідальних структур (при великих значеннях енергії взаємодії адатомів) характеризується асиметричним узагальненим екстремальним розподілом. Одержано залежності кореляційної довжини вздовж тераси пірамідальної структури від керувальних параметрів системи. Встановлено, що збільшення інтенсивності мультиплікативного шуму приводить до формування голкоподібних структур.

В рамках узагальненої моделі фазового поля, що враховує локальну зміну температури конденсату при проходженні процесів адсорбції–десорбції та формування острівців адсорбату (типовим прикладом таких систем є напівпровідники), було показано, що на ранніх стадіях еволюції системи, внаслідок конкуренції процесів адсорбції та десорбції спостерігається осциляційний режим формування острівців. Таку осциляційну динаміку досліджено з використанням підходу середнього поля та проведено порівняльну характеристику одержаних аналітично результатів із результатами комп'ютерних симуляцій. Показано, що частота температурних осциляцій залежить від потоку осадження. Порівнюючи результати, одержані в узагальненій моделі, із результатами для стандартної моделі фазового поля (при сталій температурі) вста-

новлено, що у першому випадку пірамідальні структури можуть формуватися за умови низьких значень енергії взаємодії адсорбату внаслідок вкладу термодинамічної сили до потоку адсорбату, що є протилежним до дифузійного потоку. Розглядаючи скейлінгову поведінку кореляційної функції, показано, що пірамідальні структури, які реалізуються в узагальненій моделі фазового поля, характеризуються великою різницею у висотах між двома найближчими терасами у порівнянні зі стандартною моделлю.

Проведено детальний аналіз скейлінгової поведінки процесу формування пірамідальних острівців та густини розподілу структур адсорбату за розмірами при зміні потоку осадження, енергії взаємодії адсорбату та часу релаксації температури адсорбату до температури підкладки (теплової бані). Досліджено автокореляційну функцію висоти поверхні. Встановлено, що показник шерсткості поверхні зростає з часом та на великих часових інтервалах набуває стаціонарного значення, яке залежить від часу релаксації температури конденсату. Аналіз показників росту поверхні показав, що збільшення часу релаксації температури пришвидшує процеси зростання поверхні на ранніх стадіях еволюції системи, тоді як на пізніх стадіях, коли поверхня характеризується наявністю добре виражених пірамідальних структур, процеси релаксації температури адсорбату не впливають на динаміку росту поверхні. Досліджуючи скейлінгові властивості росту пірамідальних острівців показано, що середня кількість острівців зростає з часом за степеневим законом, а середня площа острівців на середньому рівні висоти зростаючої поверхні спадає з часом за степеневим законом з тим же, за абсолютним значенням, показником. Ці степеневі залежності є інваріантними до зміни основних контролюючих параметрів системи. Було встановлено, що густина розподілу структур адсорбату за розмірами острів на середній висоті поверхні є універсальною і дається законом Ципфа незалежно від основних параметрів системи. Використовуючи альтернативний підхід до визначення розподілу структур за розмірами, пов'язаний із визначенням розміру кожної структури на її власній половині висоти, одержано лог-нормальний розподіл структур за розмірами, що характеризується найбільш ймовірним значенням середнього розміру острівців адсорбату. Використовуючи узагальнений кінетичний підхід розглянуто універсальність, скейлінгову динаміку та фрактальні властивості процесу росту пірамід. У рамках узагальненої кінетики запропоновано теоретичну модель для пояснення чисельно одержаних даних для середнього розміру острівців, їх кількості та відповідної функції розподілу за розмірами.

Із використанням стандартного термодинамічного підходу була проведена оцінка для середнього радіусу структури адсорбату на рівні половини висоти пірамідальної структури. Встановлено, що

лінійний розмір пірамідальної структури на рівні половини висоти зростає з часом та змінюється в інтервалі $\langle R \rangle \approx 100\text{--}400$ нм.

Одержані в роботі результати добре узгоджуються з відомими результатами експериментальних досліджень процесів епітаксіального росту кристалів. Представлений формалізм може бути використаний для опису процесів епітаксіального росту як для металів, коли варіації температури зростаючої поверхні у процесах адсорбції–десорбції та реорганізації структур адсорбату є неістотними, так і для систем, наприклад напівпровідників, для яких локальні зміни температури поверхні відіграють визначальну роль у процесах структуроутворення.

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА–REFERENCES

1. A.-L. Barabasi and H.E. Stanley, *Fractal Concepts in Surface Growth* (Cambridge: Cambridge University Press: 1995).
2. A. Pimpinelli and J. Villain, *Physics of Crystal Growth* (Cambridge: Cambridge University Press: 1998).
3. J. Krug, *Physica A*, **318**: 47 (2002).
4. C. Ratsch, P. Puggione, and M. Scheffler, *Surface Diffusion: Atomistic and Collective Processes* (Ed. M. C. Tringides) (New York: Plenum: 1997).
5. H. Metiu, Y.-T. Lu, and Z. Y. Zhang, *Science*, **255**: 1088 (1992).
6. C. Ratsch, M. F. Gyure, R. E. Caflisch et al., *Phys. Rev. B*, **65**: 195403 (2002).
7. S. Park, H. Jeong, and B. Kahng, *Phys. Rev. E*, **59**: 6184 (1999).
8. D. O. Kharchenko, V. O. Kharchenko, I. O. Lysenko, and S. V. Kokhan, *Phys. Rev. E*, **82**: 061108 (2010).
9. V. O. Kharchenko and D. O. Kharchenko, *Cond. Mat. Phys.*, **14**, No. 2: 23602 (2011).
10. D. O. Kharchenko and V. O. Kharchenko, *PAST*, **97**, No. 2: 16 (2011).
11. D. D. Vvedensky, *Comp. Materials Sci.*, **6**: 182 (1996).
12. J. D. Weeks and G. H. Gilmer, *Adv. Chem. Phys.*, **40**: 157 (1979).
13. W. K. Burton, N. Cabrera, and F. C. Frank, *Philos. Trans. R. Soc. London A*, **243**: 299 (1951).
14. A. M. Mullis, *Phys. Rev. E*, **68**: 011602 (2003).
15. A. E. Lobkovsky and J. A. Warren, *Phys. Rev. E*, **63**: 051605 (2001).
16. M. Conti, B. Meerson, A. Pleg, and P. V. Sasorov, *Phys. Rev. E*, **65**: 046117 (2002).
17. M. Castro, *Phys. Rev. B*, **67**: 035412 (2003).
18. F. Liu and H. Metiu, *Phys. Rev. E*, **49**: 2601 (1994).
19. A. Karma and M. Plapp, *Phys. Rev. Lett.*, **81**: 4444 (1998).
20. D. O. Kharchenko, S. V. Kokhan, and A. V. Dvornichenko, *Physica D*, **238**: 2251 (2009).
21. V. O. Kharchenko, *Physica A*, **388**: 268 (2009).
22. D. O. Kharchenko, S. V. Kokhan, and A. V. Dvornichenko, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **31**: 23 (2009).
23. D. O. Kharchenko, A. V. Dvornichenko, and V. O. Kharchenko, *Jour. Phys. Stud.*, **13**, No. 4: 4005 (2009).

24. V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, S. V. Kokhan, I. V. Vernyhora, and V. V. Yanovsky, *Physica Scripta*, **86**: 055401 (2012).
25. V. O. Kharchenko and D. O. Kharchenko, *Phys. Rev. E*, **86**: 041143 (2012).
26. V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, and A. V. Dvornichenko, *Surface Science*, **630**: 158 (2014).
27. D. O. Kharchenko, V. O. Kharchenko, and I. O. Lysenko, *Physica Scripta*, **83**: 045802 (2011).
28. A. J. Spring Thorpe and A. Majeed, *J. Vac. Sci. Technol. B*, **8**: 266 (1990).
29. A. I. Olemskoi, O. V. Yuschenko, T. I. Zhilenko, and N. V. Prodanov, *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **32**, No. 11: 1555 (2010).
30. Y.-M. Yu and B.-G. Liu, *Phys. Rev. E*, **69**: 021601 (2004).
31. D. Batogkh, M. Hildebrant, F. Krischer, and A. Mikhailov, *Phys. Rep.*, **288**: 435 (1997).
32. S. E. Mangioni and H. S. Wio, *Phys. Rev. E*, **71**: 056203 (2005).
33. S. E. Mangioni, *Physica A*, **389**: 1799 (2010).
34. H. Emmerich, *Continuum Mech. Thermodyn.*, **15**: 197 (2003).
35. G. Fix, *Free Boundary Problems* (Eds. A. Fasano and M. Primicario) (London: Pittman: 1983).
36. J. B. Collins and H. Levine, *Phys. Rev. B*, **31**: 6119 (1985).
37. J. S. Langer, *Directions in Condensed Matter Physics* (Eds. G. Grinstein and G. Mazenko) (Singapore: World Scientific: 1986).
38. L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Statistical Physics. Part 1. Vol. 5* (Oxford: Butterworth-Heinemann: 1980).
39. D. D. Joseph and L. Preziosi, *Rev. Mod. Phys.*, **61**, No. 1: 41 (1989).
40. D. O. Kharchenko, V. O. Kharchenko, T. Zhylenko, and A. V. Dvornichenko, *Eur. Phys. J. B*, **86**: 175 (2013).
41. W. Horsthemke and R. Lefever, *Noise Induced Transitions* (Berlin: Springer-Verlag: 1984).
42. F. Kh. Mirzoev, V. Ya. Panchenko, and L. A. Shelepin, *Physics-Uspokhi*, **39**: 1 (1996).
43. B. B. Mandelbrodt, *The Fractal Geometry of Nature* (New York: Freeman: 1982).
44. Ch. Teichert, *Physics Reports*, **365**: 335 (2002).
45. P. Meakin, *Fractals, Scaling and Growth Far from Equilibrium* (Cambridge: Cambridge University Press: 1998).
46. F. Family and T. Vicsek, *J. Phys. A*, **18**: L75 (1985).
47. F. Family, *Physica A*, **168**: 561 (1990).
48. S. K. Sinha, E. B. Sirota, S. Garoff, and H. B. Stanley, *Phys. Rev. B*, **38**: 2297 (1988).
49. L. Giada, A. Giacometti, and M. Rossi, *Phys. Rev. E*, **65**: 036134 (2002).
50. A.-L. Barabási and H. E. Stanley, *Fractal Concepts in Surface Growth* (New York: Cambridge University Press: 1995).
51. J. Krug, *Adv. Phys.*, **46**: 139 (1997).
52. S. Das Sarma, *J. Vac. Sci. Technol. A*, **8**: 2174 (1990); idem, *J. Vac. Sci. Technol. B*, **10**: 1695 (1992); idem, *Fractals*, **1**: 784 (1993); idem, *Comput. Mater. Sci.*, **6**: 149 (1996).
53. S. Das Sarma, C. J. Lanczycki, R. Kotlyar, and S. V. Ghaisas, *Phys. Rev. E*, **53**: 359 (1996).
54. P. I. Tamborenea and S. Das Sarma, *Phys. Rev. E*, **48**: 2575 (1993).
55. J. Krim and G. Palasantzas, *Int. J. Mod. Phys. B*, **9**: 599 (1995).

56. M. Kardar, G. Parisi, and Y. C. Zhang, *Phys. Rev. Lett.*, **56**: 889 (1986).
57. S. Das Sarma, *Dynamic Scaling in Epitaxial Growth in Morphological Organization in Epitaxial Growth and Removal* (Eds. Z. Zhang and M. G. Lagally) (Singapore: World Scientific: 1999), vol. 14, p. 94.
58. S. F. Edwards and D. R. Wilkinson, *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, **381**: 17 (1982).
59. D. E. Wolf and J. Villain, *Europhys. Lett.*, **13**: 389 (1990).
60. S. Das Sarma and P. I. Tamborenea, *Phys. Rev. Lett.*, **66**: 325 (1991).
61. Z. W. Lai and S. Das Sarma, *Phys. Rev. Lett.*, **66**: 2348 (1991).
62. D. Wilby, D. D. Vvedensky, and A. Zangwill, *Phys. Rev. B*, **46**: 12896 (1992).
63. V. O. Kharchenko, D. O. Kharchenko, and A. V. Dvornichenko, *Eur. Phys. Journ. B*, **88**: 3 (2015).
64. L. P. Pitaevskii and E. M. Lifshitz, *Physical Kinetics. Vol. 10* (Oxford: Pergamon Press: 1981).
65. G. Kaniadakis, *Phys. Lett. A*, **288**: 283 (2001).
66. C. Tsallis, *Nonextensive Statistical Mechanics and Its Applications. Lecture Notes in Physics* (Eds. S. Abe and Y. Okamoto) (Berlin: Springer: 2000).
67. D. O. Kharchenko, V. O. Kharchenko, and S. V. Kokhan, *Cond. Mat. Phys.*, **17**: 33004 (2014).
68. L. Borland, *Phys. Rev. E*, **57**: 6634 (1998).
69. D. O. Kharchenko and V. O. Kharchenko, *Physica A*, **354**: 262 (2005).
70. J. W. Kantelhardt, S. A. Zschiegner, E. Koscielny-Bunde et al., *Physica A*, **316**: 87 (2002).
71. J. Feder, *Fractals* (New York–London: Plenum Press: 1988).
72. H. E. Hurst, *Trans. Am. Soc. Civ. Eng.*, **116**: 770 (1951).

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

**State Scientific Institution 'Institute for Single Crystals', N.A.S. of Ukraine,
Nauky Ave., 60,
61001 Kharkiv, Ukraine*

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

¹ Fig. 1. Schematic presentation of processes realized at epitaxial growth: a) adsorption; б) diffusion; в) nucleation; г) attachment; д) detachment; е) edge diffusion; ж) diffusion down step; з) nucleation on a top of islands; и) dimmer diffusion.

² Fig. 2. Snapshots of the order parameter ϕ at $t = 0, 20$ and 70 (from top to bottom) at different initial conditions: а) one adatom in a centre; б) edge dislocation; в) screw dislocation.

³ Fig. 3: Snapshots of the order parameter ϕ at: а) $\varepsilon = 4.0, F = 2.0$; б) $\varepsilon = 4.0, F = 4.0$; в) $\varepsilon = 2.0, F = 2.0$.

⁴ Fig. 4. Evolution of а) interface width W^2 , б) skewness m_3 , and в) kurtosis m_4 at different values of interaction strength of adsorbate ε , noise intensity Σ , and constant value of the deposition flux $F = 2$.

⁵ Fig. 5. Probability density function of heights at $t = 200$ and different values of interaction strength of adsorbate for the deterministic and stochastic systems at $F = 2$.

⁶ Fig. 6. Correlation functions at different values of system parameters and corresponding asymptotics.

⁷ Fig. 7. Dependences of correlation radius ξ on: (а) interaction strength ε (snapshots correspond to $\varepsilon = 1.5, \varepsilon = 2.5$, and $\varepsilon = 5$); (б) noise intensity Σ (snapshots correspond to $\Sigma = 0.2$ and $\Sigma = 0.6$). Other parameters are as follow: $F = 2, t = 40$. Here, $\Delta_h = \langle \phi_{\max} - \phi_{\min} \rangle$ defines mean height difference between lowest ϕ_{\min} and highest ϕ_{\max} surface points.

⁸ Fig. 8. (a) Dependences of stationary states of homogeneous system (20) on deposition flux F . (b) Phase diagram (in domain I, islands do not grow due to $\partial_t \langle \phi \rangle = 0$; in domain II, islands grow according to $\partial_t \langle \phi \rangle > 0$).

⁹ Fig. 9. Phase diagram of oscillatory regime realization at $\lambda = 10$. In domain above curves, the decaying oscillations are realized; under curves, there is Debye relaxation.

¹⁰ Fig. 10. Evolution of the phase field (the first column), adatoms' concentration field (the second column), and adsorbate-temperature field (the third column) at $t = 5, 30$ and 60 (first, second and third lines, respectively). Other parameters are as follow: $\varepsilon = 4, F = 4, \nu = 10, \chi = 10, \varpi = 2, \lambda = 10, a = 0.01, b = 0.05$.

¹¹ Fig. 11. Evolution of the mean phase field, adatoms' concentration field, and temperature field at: a) $F = 0.2, \varepsilon = 1$; б) 1— $F = 4, \varepsilon = 2$ and 2— $F = 2, \varepsilon = 4$. Other parameters are the same as in Fig. 10.

¹² Fig. 12. Dependences of the oscillatory frequency ω on deposition flux F at different values of interaction strength ε and relaxation time of the temperature field ν .

¹³ Fig. 13. Probability density functions of the phase field counted off the averaged value $\langle \phi \rangle$ at $F = 2$ and different values for the interaction strength ε for two kinds of models: a) the standard two-component model at fixed temperature $\theta = 1$; б) generalized model at varying temperature field (averaged temperatures are shown in legends). The upper row corresponds to $\varepsilon = 4$; the lower row relates to $\varepsilon = 2$.

¹⁴ Fig. 14. Correlation functions for two kinds of phase-field models at $F = 2$ and different values of the interaction strength ε .

¹⁵ Fig. 15. Roughness exponents $\{\alpha_i\}$ for $F = 4, \varepsilon = 4$ and different values of the relaxation time for the temperature field ν . In insertion, corresponding correlation functions $C(r)$ at $t = 200$ are shown.

¹⁶ Fig. 16. Growth exponents $\{\beta_i\}$ at $F = 4, \varepsilon = 4$ and different values of the relaxation time for the temperature field ν . Dependences $W^2(t)$ are shown in insertion.

¹⁷ Fig. 17. Evolution of the averaged number of pyramids (a) and the averaged area of islands with the mean height (b) at $F = 4, \varepsilon = 4$ and different values of the relaxation time for the temperature field ν .

¹⁸ Fig. 18. Evolution of the averaged number of pyramids (a) and the averaged area of islands with the mean height (b) at $\nu = 0.1$ and different values of the deposition flux F and interaction strength ε .

¹⁹ Fig. 19. Snapshots of cross-sections of pyramids on the mean height level at $F = 4, \varepsilon = 4, \nu = 0.1$ in different instants of times and dependences of the total islands' area on the mean height level at $\nu = 0.1$.

²⁰ Fig. 20. Dependences of the probability P on reduced averaged island area at: (a) $\varepsilon = 4, F = 4, \nu = 0.1$ and different evolution time; (б) $\varepsilon = 4, F = 4, t = 50$ and different values of the relaxation time for the temperature field ν ; (в) $\nu = 0.1, t = 50$ and different values of the interaction strength ε and deposition flux F . Numerics are shown by symbols, and the corresponding approximations $P(s) = C_0 + C_1 \ln(s)$ are given by lines.

²¹ Fig. 21. Dependences of the averaged number of islands on average island area at different times with $\nu = 0.1$. The probability density function $p(s)$ at $\varepsilon = 4, F = 4, \nu = 0.1$ and $t = 50$ is shown in the insertion.

²² Fig. 22. Probability density functions for the radius distributions of pyramidal islands at half-height of each pyramid: a) at different simulation times and $F = 4, \varepsilon = 4, \nu = 0.1$; б) at different system parameters at $t = 100$.

²³ Fig. 23. Typical time dependence of the mean size of adsorbate islands in units of diffusion length.

²⁴ Fig. 24. Protocol for the second moment (a) and the corresponding probability density functions (b) at different times (the open and filled circles) at fixed Q and at fixed $t = 200$ and different Tsallis exponents Q .

²⁵ Fig. 25: (a) Protocols for the fluctuations in time series $s(t)$ at different Q and (б) the singularity spectrum $f(\alpha)$ with the dependences $h(q)$ as insertion.