

12,13

Исследование условий самоорганизованного перехода в бистабильный режим квазиравновесной конденсации и разборки поверхности

© А.И. Олемской, О.В. Ющенко, Т.И. Жиленко

Сумский государственный университет,
Сумы, Украина
Институт прикладной физики НАН Украины,
Сумы, Украина
E-mail: Yushchenko@phe.sumdu.edu.ua

(Поступила в Редакцию 18 мая 2010 г.)

В рамках синергетического подхода проанализированы условия, обеспечивающие близость стационарного процесса конденсации/распыления к фазовому равновесию. Показано, что флуктуации температуры ростовой поверхности и потока десорбции адатомов играют роль мультипликативного шума, усиление которого приводит к трансформации унимодального распределения пересыщения осаждаемого компонента в бимодальное. Продемонстрировано, что подобную трансформацию обеспечивает зависимость времени релаксации пересыщения от величины последнего. Предложенная картина подтверждается экспериментальными данными, согласно которым указанная бистабильность проявляется в том, что стационарное состояние квазиравновесной системы плазма–конденсат отвечает не только напылению, но и самоорганизованному режиму разборки предварительно напыленного конденсата.

1. Введение

Одним из перспективных направлений современных нанотехнологий является конденсация вещества, использование которой в стационарном режиме, близком к фазовому равновесию, позволяет получать весьма нетривиальные структуры (см. [1,2] и имеющиеся там ссылки). Примеры указанных структур дают ступенчатая поверхность монокристалла никеля и ажурная структура меди, показанные на рис. 1. Более того, использование методики квазиравновесной конденсации, развитой в [3–6], позволяет получать такие нанообъекты, как фуллерены, нанотрубки, микро- и нанокристаллы алмаза и т.д. Столь широкие возможности обеспечиваются близостью системы плазма–конденсат к фазовому равновесию, благодаря чему адатомы выстраиваются на активных центрах кристаллизации, образуя структуры с различной архитектурой.

Поскольку процесс конденсации носит квазиравновесный стационарный характер, принципиально важным является вопрос о причинах удержания системы плазма–конденсат вблизи фазового равновесия. Учитывая универсальный характер указанной картины конденсации, мы предположили ранее [1,2], что она обусловлена самоорганизацией многофазной системы плазма–конденсат. С физической точки зрения указанная самоорганизация обусловлена тем, что повышение энергии адатомов под действием плазмы способствует увеличению температуры ростовой поверхности в процессе конденсации, которое компенсируется потоком десорбции адатомов, ответственных за пересыщение. В предыдущих работах [1,2] нам удалось отобразить только основные черты картины такой самоорганизации в пренебрежении наличием флуктуаций и прерывистым характером процесса

конденсации. Предлагаемая работа посвящена дальнейшему развитию теории [1] в направлении, предложенном в работе [7]. При этом мы намеренно отвлекаемся от задачи о коалесценции [8–10], развитой применительно к ансамблю выделений новой фазы под действием внешних источников [11]. Рассмотрение этого вопроса требует отдельного исследования.

Прежде чем перейти к построению теоретической схемы, следует отметить основные особенности ионно-плазменной системы, использование которой позволяет реализовать самоорганизованный режим квазиравновесной стационарной конденсации [1–6]. Согласно блок-схеме, приведенной на рис. 2, основными элементами этой системы является пара анод–катод со встроенным в нее магнитом, действие которого способствует многократному росту плотности плазмы в среде инертного газа. Принципиально важным является использование полого катода, во внутренней части которого расположена подложка, отделенная от анода входным отверстием и заслонкой. Такая конструкция позволяет получить вблизи ростовой поверхности высококонцентрированную плазму, состоящую из ионов распыляемого вещества и инертного газа. Согласно методике [3–6], сначала в камере достигается высокий вакуум, затем производится напуск инертного газа, давление которого понижает длину свободного пробега частиц плазмы до микрометров. Распыление мишени протекает в режиме тлеющего разряда, стационарное течение которого обеспечивается магнетронным эффектом и кумулирующим действием полого катода. Толщина прикатодного слоя, в котором происходит основное падение потенциала, определяется дебаевской длиной экранирования λ , которая наряду с коэффициентом диффузии D задается

равенствами [12,13]

$$\lambda^2 = \frac{\varepsilon T_p}{4\pi e^2 N_i}, \quad D = \frac{\sigma T_p}{e^2 N_i}, \quad (1)$$

где ε , σ — диэлектрическая проницаемость и проводимость плазмы, T_p — ее температура, измеренная в энергетических единицах, e , N_i — заряд и суммарная концентрация ионов осаждаемого вещества и инертного газа в системе накопления. Объемная концентрация атомов напыляемого вещества у верхней границы прикатодного слоя сводится к накопленному значению N_{ac} , а нижняя граница этого слоя представляет ростовую поверхность, вблизи которой концентрация атомов составляет N (в квазиравновесных условиях ее значение незначительно отличается от равновесной концентрации N_e). Адсорбируемый поток сводится к диффузионной составляющей, определяемой соотношением Онзагера [13]

$$J_{ad} \equiv D|\nabla N| \simeq \frac{D}{\lambda} (N_{ac} - N). \quad (2)$$

В начале конденсации, когда реализуется условие равновесия $N = N_e$, этот поток принимает максимальное

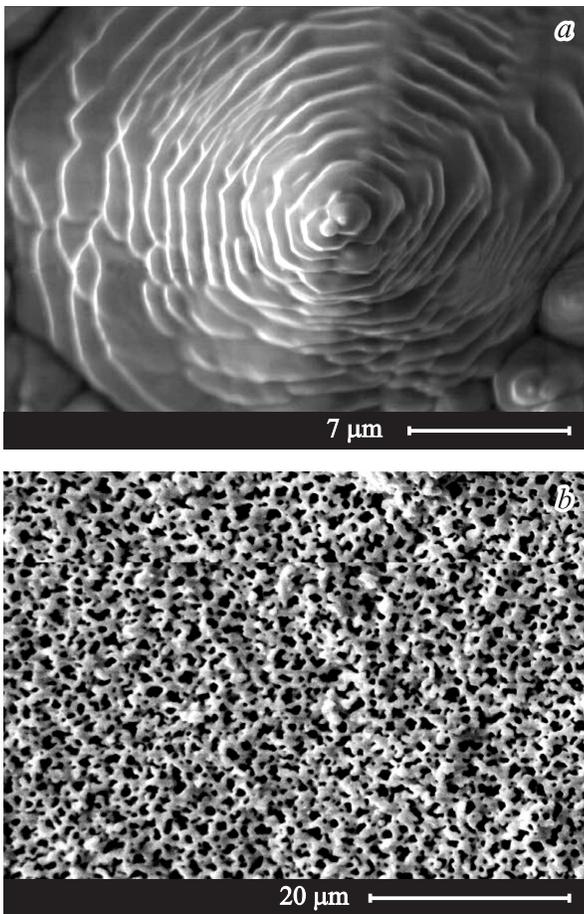


Рис. 1. *a*) Монокристалл никеля, полученный при квазиравновесной конденсации в условиях полевой селективности [1]. *b*) Ажурная структура меди, полученная распылением осаждаемого материала при повышенной мощности разряда [4].

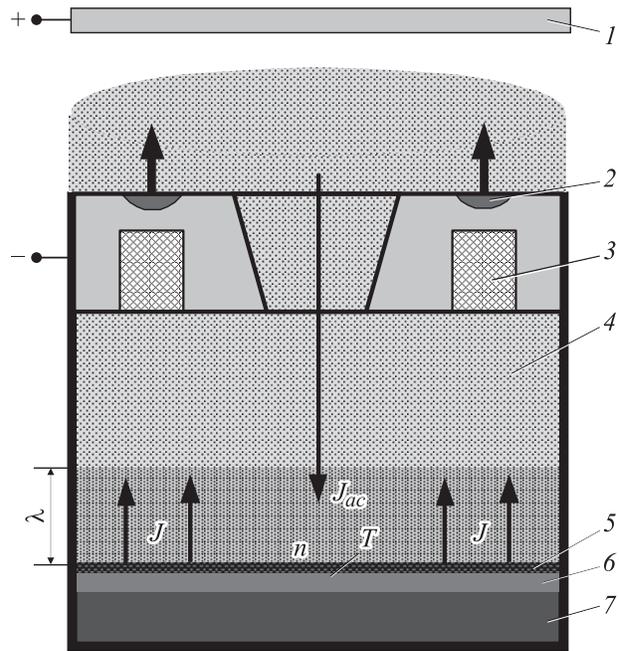


Рис. 2. Блок-схема ионно-плазменной распылительной системы, обеспечивающей режим квазиравновесной стационарной конденсации. 1 — анод, 2 — зона эрозии распыляемого материала, 3 — система магнитов, 4 — полый катод, 5 — слой адсорбированных атомов, 6 — конденсат, 7 — подложка.

значение, величина которого несущественно превышает стационарный поток (2). Условие близости к равновесию $|N - N_e| \ll N_e$ обеспечивает высококонцентрированная плазма, наличие которой настолько повышает температуру подложки, что приближает к фазовому равновесию не только вещества, обладающие высокой летучестью, но и металлы и полупроводники, у которых она весьма низка.

Согласно [1], исследование процесса самоорганизации достигается использованием синергетической схемы, основанной на трехпараметрической системе Лоренца [14,15]. В рамках такой схемы изложению стохастической картины самоорганизации посвящен раздел 2, а в разделе 3 представлено исследование прерывистого режима самоорганизации по механизму фазового перехода первого рода.

2. Самоорганизация стохастической системы плазма–конденсат

Поскольку самоорганизация обусловлена процессами, протекающими на ростовой поверхности, далее следует перейти от объемной концентрации N к поверхностной $n \equiv Na$, где a — масштабный фактор, подлежащий определению. С физической точки зрения, спад пере-сыщения $n - n_e$ обеспечивается потоком десорбции J , а его прирост — диффузионной составляющей J_{ad} , определенной потоком адсорбции (2) (поскольку век-

тор \mathbf{J} направлен от ростовой поверхности, его величина $J < 0$, а значение адсорбционного потока $J_{ad} > 0$). В отсутствие конденсата, когда все адатомы испаряются с подложки, для первой составляющей выполняется условие $J = -J_{ac}$, где накопленный поток J_{ac} определен равенством (2), в котором $N = N_e$. Для диффузионной компоненты уравнение непрерывности $\dot{n}/a + \nabla \mathbf{J}_{ad} = 0$, в котором точка означает дифференцирование по времени, а действие источника определяется оценкой $|\nabla \mathbf{J}_{ad}| \simeq J_{ad}/\lambda \simeq (D/\lambda^2)(n - n_e)/a$, дает $\dot{n} \simeq -(D/\lambda^2)(n - n_e)$. Соответственно скорость десорбции числа атомов $\int \dot{N} dv$ в объеме v , опирающемся на ростовую поверхность площадью s , составляет $\int \dot{N} dv = -\int (\nabla \mathbf{J}) dv = -\int \mathbf{J} ds$, где первое равенство учитывает условие непрерывности, а второе — теорему Гаусса. Тогда с учетом флуктуационной добавки $\sigma_n \xi$ изменение концентрации $n = n(t)$ вблизи ростовой поверхности описывается уравнением

$$\dot{n} = \frac{n_e - n}{\tau} - J + \sigma_n \xi. \quad (3)$$

Здесь σ_n представляет амплитуду белого шума $\xi = \xi(t)$, определенного стандартными условиями [16]

$$\langle \xi(t) \rangle = 0, \quad \langle \xi(t) \xi(t') \rangle = \delta(t - t'); \quad (4)$$

характерное время изменения пересыщения задается равенствами

$$\tau \equiv \frac{\lambda^2}{D} = \frac{\varepsilon}{4\pi\sigma}, \quad (5)$$

второе из которых учитывает соотношения (1). В стационарном режиме самоорганизации, когда $\dot{n} = 0$ и отсутствуют флуктуации ($J = -J_{ac}$, $\sigma_n = 0$), устанавливается пересыщение

$$n_{ac} - n_e = \tau J_{ac}. \quad (6)$$

Согласно уравнению (3), с отклонением от стационарного состояния пересыщение (6) достигается в результате дебаевской релаксации со временем (5).

С физической точки зрения, процесс самоорганизации обусловлен тем, что с ростом пересыщения $n - n_e$ конденсированные атомы передают ростовой поверхности избыток своей энергии, увеличивая ее температуру T , отсчитанную от температуры окружающей среды. Это усиливает испарение атомов осаждаемого вещества за счет роста абсолютного значения потока десорбции $J < 0$, компенсирующего начальное пересыщение. Таким образом, представление последовательной картины квазиравновесного процесса конденсации требует самосогласованного описания временных зависимостей концентрации адатомов $n(t)$, температуры ростовой поверхности $T(t)$ и потока десорбции $J(t)$. В рамках синергетического подхода уравнения эволюции содержат диссипативные вклады указанных величин и слагаемые, представляющие положительную и отрицательную обратные связи, баланс которых обеспечивает процесс

самоорганизации [14]; кроме того, будем учитывать наличие стохастических источников, действие которых всегда имеет место в экспериментальных условиях. Так, в уравнении (3) вклад диссипации представляет первое слагаемое в правой части, а второе дает линейную связь между скоростью изменения концентрации и потоком десорбции. Подобным образом описывается изменение температуры ростовой поверхности

$$\tau_T \dot{T} = -T - a_T n J + \sigma_T \xi. \quad (7)$$

Здесь τ_T — соответствующее время релаксации, $a_T > 0$ — константа связи, σ_T — амплитуда флуктуаций температуры поверхности. В отличие от уравнения (3) здесь полагается, что диссипация приводит к релаксации температуры ростовой поверхности к значению $T = 0$, отсчитанному от температуры окружающей среды; второе слагаемое представляет нелинейную связь концентрации и потока, которая уменьшает скорость изменения температуры, а последнее — стохастическую добавку. Для обеспечения самоорганизации требуется компенсировать отрицательную связь в выражении (7) положительной составляющей в уравнении эволюции потока

$$\tau_J \dot{J} = -(J_{ac} + J) + a_J n T + \sigma_J \xi. \quad (8)$$

Здесь τ_J представляет время релаксации к обратному значению $-J_{ac}$ потока накопления, $a_J > 0$ — константа связи, обеспечивающей рост потока за счет взаимного влияния концентрации адатомов и температуры ростовой поверхности, σ_J — амплитуда флуктуаций потока. Уравнения (3), (7), (8) представляют синергетическую систему Лоренца, в рамках которой пересыщение $n - n_e$ сводится к параметру порядка, температура ростовой поверхности T — к сопряженному полю, а поток десорбции J — к управляющему параметру [14].

Исследование системы (3), (7), (8) наиболее просто достигается в безразмерном виде с использованием характерных масштабов, сводящихся к времени релаксации (5), длине $a = (a_T a_J)^{1/4}$ и энергии $\varepsilon = (\tau a_J)^{-1}$. Тогда время t , концентрация n , температура ростовой поверхности T , поток J и амплитуды их флуктуаций σ_n , σ_T , σ_J измеряются соответственно в следующих единицах:

$$\tau, a^{-2}, \varepsilon, \tau^{-1} a^2, \tau^{-1/2} a^{-2}, \tau^{1/2} \varepsilon, \tau^{-1/2} a^2. \quad (9)$$

В результате безразмерная система уравнений, описывающих флуктуационный переход в системе плазма-конденсат, принимает вид

$$\begin{cases} \dot{n} = -(n - n_e) - J + \sigma_n \xi, \\ \delta \dot{T} = -T - n J + \sigma_T \xi, \\ \sigma \dot{J} = -(J_{ac} + J) + n T + \sigma_J \xi, \end{cases} \quad (10)$$

где введены соотношения времен релаксации

$$\delta \equiv \tau_T / \tau, \quad \sigma \equiv \tau_J / \tau. \quad (11)$$

В равновесном состоянии, когда отсутствуют флуктуации и зависимость от времени, первое из уравнений (10) дает постоянное пересыщение J_{ac} (ср. с (6)). Соответственно второе равенство (10) приводит в стационарном случае к зависимости $T = n|J|$, согласно которой температура ростовой поверхности повышается в результате взаимного увеличения концентрации адатомов и потока адсорбции. И наконец, третье уравнение определяет стационарный поток $J = -J_{ac} + nT$, который увеличивается от значения $-J_{ac}$ благодаря совместному росту концентрации адатомов и температуры.

В ходе конденсации обычно выполняются условия $\tau_T, \tau_J \ll \tau$, означающие, что температура $T(t)$ и поток $J(t)$ следуют за изменением концентрации адатомов $n(t)$. Благодаря этому при исследовании системы (10) можно воспользоваться адиабатическим приближением

$$\delta, \sigma \ll 1, \quad (12)$$

согласно которому в двух последних уравнениях (10) левые части близки к нулю. Тогда детерминистические составляющие этих уравнений приводят к зависимостям

$$T = J_{ac} \frac{n}{1+n^2}, \quad J = -\frac{J_{ac}}{1+n^2}, \quad (13)$$

которые показывают, что рост концентрации адатомов приводит сначала к линейному увеличению температуры ростовой поверхности, которое при $n = 1$ выходит на насыщение, отвечающее максимальному значению $T_{max} = J_{ac}/2$; при этом поток десорбции возрастает от значения $J_{min} = -J_{ac}$ до $J_{max} = -J_{ac}/2$. Если учесть не только детерминистические, но и стохастические составляющие, то система (10) сводится к уравнению Ланжевена

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\frac{\partial F}{\partial n} + \sigma(n)\xi(t), \quad (14)$$

где эффективный потенциал имеет вид

$$F = (n - 2n_e)n/2 - J_{ac} \arctg(n), \quad (15)$$

а амплитуда шума определяется равенством

$$\sigma^2(n) = \sigma_n^2 + \frac{\sigma_J^2 + \sigma_T^2 n^2}{(1+n^2)^2}, \quad (16)$$

следующим из условия адитивности дисперсий гауссовских стохастических источников [16]. Минимальное значение потенциала (15) достигается в стационарной точке n_0 , положение которой определяется уравнением

$$(n_0 - n_e)(1 + n_0^2) = J_{ac}. \quad (17)$$

Его решение показывает, что с ростом накопленного потока J_{ac} стационарное пересыщение n_0 сначала нарастает от равновесного значения линейным образом, а затем этот рост замедляется. Поскольку величина пересыщения намного меньше равновесного значения ($|n_0 - n_e| \ll n_e$), в последнем множителе уравнения (17) концентрацию можно принять равновесной, откуда следует

$$n_0 - n_e \leq \frac{J_{ac}}{1+n_e^2} \leq J_{ac}. \quad (18)$$

В свою очередь стационарное значение эффективного потенциала (15) монотонно спадает с ростом накопленного потока J_{ac} и равновесной концентрации n_e . Такое поведение представляется оценками

$$F_0 \leq -\frac{n_0^2}{2} \leq -\frac{1}{2}(n_e + J_{ac})^2. \quad (19)$$

Согласно равенствам (13) и последней оценке (18), в стационарном состоянии поток адсорбции $|J_0|$ и температура ростовой поверхности T_0 принимают значения

$$|J_0| = n_0 - n_e \leq J_{ac},$$

$$T_0 = n_0(n_0 - n_e) \leq n_e J_{ac}. \quad (20)$$

Отсюда следует важное заключение: самоорганизованный процесс конденсации протекает таким образом, что поток десорбции J_0 практически компенсирует накопленный поток J_{ac} , слабо изменяя начальную температуру ростовой поверхности $T_{ac} = n_e J_{ac}$. Поскольку разность

$$J_c \equiv J_{ac} + J_0 = J_{ac} - |J_0| \quad (21)$$

обеспечивает приток напыляемого вещества в конденсат, ее малость ($J_c \ll J_{ac}$) отражает квазиравновесный характер процесса самоорганизации.

Обладая стохастическим источником, уравнение Ланжевена (14) имеет бесконечный набор решений, распределенных по значениям случайной переменной n с плотностью вероятности $P = P(n, t)$. Это распределение задается уравнением Фоккера–Планка [16,17]

$$\frac{\partial P(n, t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial n} \left\{ -f(n)P(n, t) + \frac{\partial}{\partial n} [\sigma^2(n)P(n, t)] \right\}, \quad (22)$$

где эффективная сила

$$f(n) = -\frac{\partial F}{\partial n} + \frac{\lambda}{2} \frac{\partial \sigma^2}{\partial n} \quad (23)$$

определяется синергетическим потенциалом (15), а добавка представляет стохастический дрейф, обусловленный выбором исчисления (так, в случае Ито $\lambda = 0$, а для исчисления Стратоновича $\lambda = 1/2$). Стационарное решение уравнения (22) имеет вид

$$P(n) = \frac{Z^{-1}}{\sigma^2(n)} \exp \left\{ \int \frac{f(n)}{\sigma^2(n)} dn \right\}, \quad (24)$$

где константа Z определяется условием нормировки.

Уравнение, определяющее положение экстремумов функции распределения (24), имеет вид

$$(n - n_e)(1 + n^2)^3 - J_{ac}(1 + n^2)^2 + (2 - \lambda)n[\sigma_T^2(1 - n^2) - 2\sigma_J^2] = 0. \quad (25)$$

Отсюда следует, что вид распределения $P(n)$ не зависит от амплитуды флуктуаций концентрации σ_n , определяясь накопленным потоком J_{ac} и амплитудами флуктуаций σ_T, σ_J температуры подложки и потока. В общем

случае уравнение (25) имеет семь корней, однако только один или три из них могут принимать вещественные значения. Уравнение

$$(1 + n^2)^3 + 6n(n - n_e)(1 + n^2)^2 - 4J_{ac}n(1 + n^2) + (2 - \lambda)[\sigma_T^2(1 - 3n^2) - 2\sigma_J^2] = 0, \quad (26)$$

определяющее переход унимодального распределения $P(n)$ в бимодальное, получается из условия

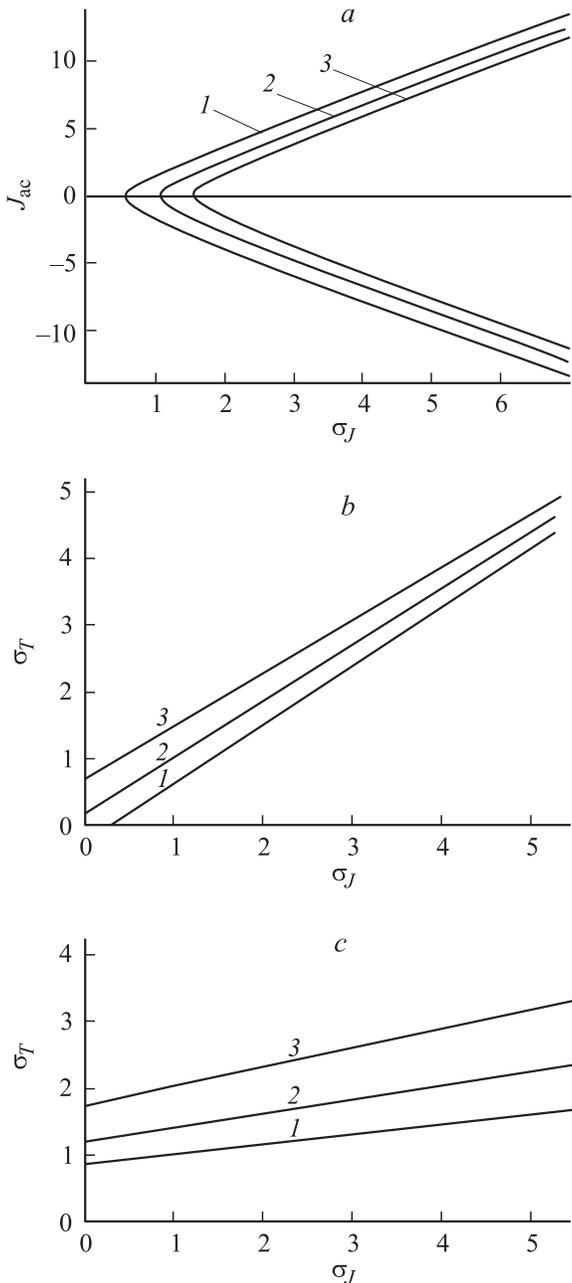


Рис. 3. Фазовые диаграммы, определяющие область бимодального распределения $P(n)$ (прилегает к оси абсцисс правее кривых) при $n_e = 0.1$, $\sigma_n = 0.1$. *a* — $\lambda = 0$, амплитуда шума температуры поверхности $\sigma_T = 0$ (1), 2.0 (2) и 3.0 (3); *b* — $\lambda = 0$, значения накопленного потока $J_{ac} = -5.0$ (1), 0 (2) и 5.0 (3); *c* — $J_{ac} = 0$ и $\lambda = 0$ (1), 1/2 (2) и 1 (3).

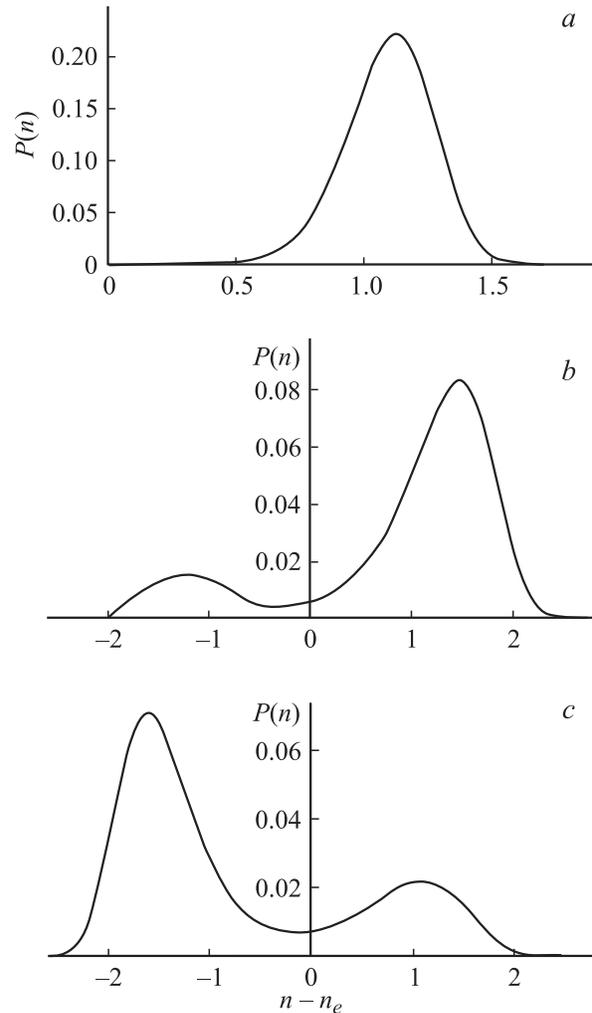


Рис. 4. Распределение пересыщений при $\lambda = 1/2$. *a* — $n_e = 0.1$, $J_{ac} = 2.5$, $\sigma_n = 0.1$, $\sigma_T = 0.25$, $\sigma_J = 0.5$; *b* — $n_e = 0.1$, $J_{ac} = 2.5$, $\sigma_n = 0.1$, $\sigma_T = 0.25$, $\sigma_J = 3.5$; *c* — $n_e = 0.1$, $J_{ac} = -2.5$, $\sigma_n = 0.1$, $\sigma_T = 0.25$, $\sigma_J = 2.5$.

$\frac{dn}{dJ_{ac}} = \infty$ при дифференцировании равенства (25) по потоку J_{ac} . Совместное решение уравнений (25), (26) приводит к фазовым диаграммам, показанным на рис. 3. Из этих диаграмм видно, что бимодальное распределение реализуется в ограниченной области накопленных потоков J_{ac} при амплитудах флуктуаций потока σ_J , ограниченных минимальным значением. Возрастая с увеличением амплитуды флуктуаций температуры подложки σ_T , это значение спадает при увеличении параметра исчисления λ .

Таким образом, можно заключить, что флуктуации потока напыляемых атомов способствуют трансформации унимодального распределения пересыщений в бимодальное, а флуктуации температуры подложки препятствуют ей. Что касается выбора параметра исчисления λ , то его рост также способствует переходу в бимодальный режим. Из рис. 4, на котором показаны возможные виды плотности распределения пересыщений в различных условиях напыления, видно, что кроме указанного влия-

ния флуктуаций существенное значение имеют величина и направление накопленного потока J_{ac} : при $J_{ac} > 0$ наиболее ярко выражен максимум распределения $P(n)$, отвечающий положительным пересыщениям $n - n_e > 0$ (рис. 4, *b*), а в обратном случае $J_{ac} < 0$ основной максимум отвечает стационарным концентрациям n , не превышающим равновесное значение n_e (рис. 4, *c*).

С физической точки зрения, распределение $P(n)$, для которого наиболее вероятны отрицательные значения пересыщения $n - n_e$ и накопленного потока J_{ac} , означает, что система попадает в стационарное состояние, в котором процесс самоорганизации приводит не к конденсации атомов, а к обратному процессу разборки конденсата. В отличие от обычного распыления этот процесс протекает в стационарных условиях, обеспечивающих близость к межфазному равновесию, благодаря чему открываются уникальные возможности управлять архитектурой конденсата не только при адсорбции напыляемых атомов, но и в процессе их стационарной десорбции. Экспериментально самоорганизованная разборка конденсатов меди наблюдалась в работе [4], где распыление обеспечивалось повышением мощности разряда, которое приводило к образованию ажурных структур, показанных на рис. 1, *b*.

3. Прерывистый переход

Картина, изложенная в предыдущем разделе, предполагает, что в ходе перестройки системы плазма-конденсат характерное время изменения концентрации τ сохраняет постоянное значение. В действительности реакция системы на увеличение концентрации адатомов n может приводить к изменению этого времени. Основываясь на простейшей зависимости

$$\tau = \tau_0 \left(1 + \frac{\kappa}{1 + n^2/n_\tau^2} \right)^{-1}, \quad (27)$$

характеризуемой константами $\tau_0 = \lambda^2/D$, κ , n_τ , покажем, что такое поведение трансформирует непрерывный переход в прерывистый. Действительно, подстановка выражения (27) в (3) приводит к уравнению Ланжевена (14) с эффективным потенциалом

$$F = (n - 2n_e)n/2 - J_{ac} \arctg(n) - \kappa n_e n_\tau \arctg\left(\frac{n}{n_\tau}\right) + \frac{\kappa n_\tau^2}{2} \ln[1 + (n/n_\tau)^2], \quad (28)$$

который в сравнении с (15) приобретает два последних слагаемых. Как видно из рис. 5, этот потенциал обладает двумя минимумами, каждый из которых отвечает различным стационарным состояниям системы. Так, в случае, приведенном на рис. 5, *a*, наиболее глубокий минимум отвечает положительным пересыщениям, благодаря чему более выгодным является самоорганизованный процесс конденсации. С уменьшением накопленного потока J_{ac} наблюдается ситуация (рис. 5, *b*),

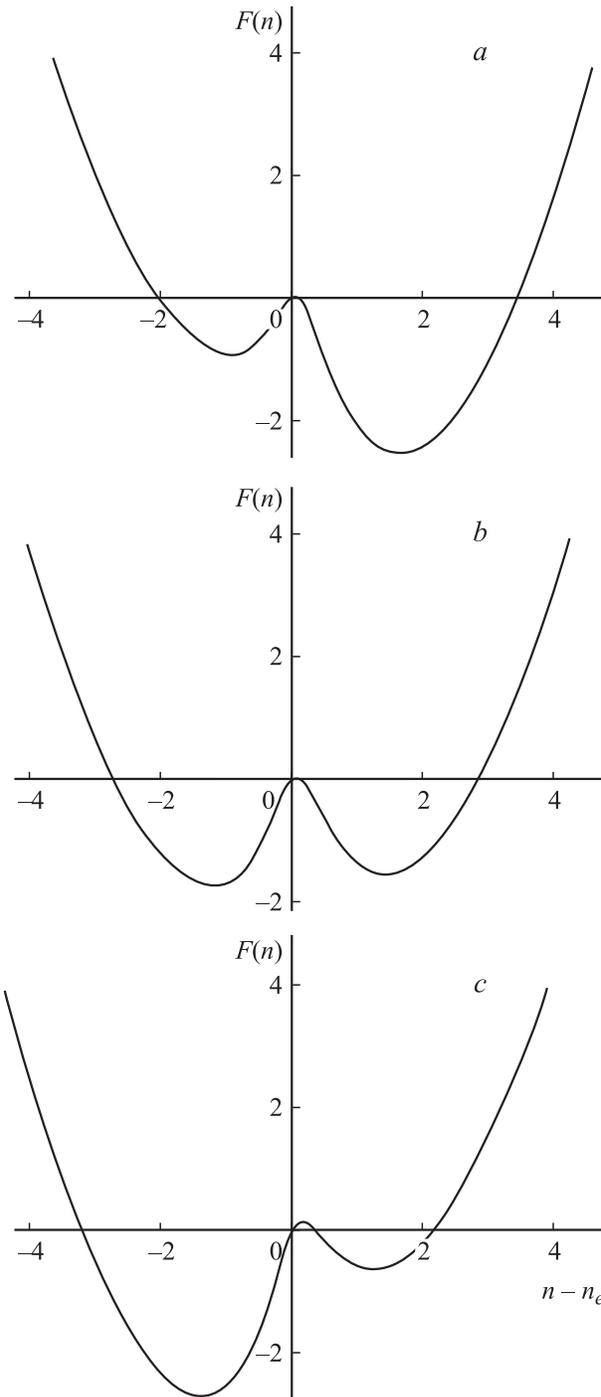


Рис. 5. Зависимость эффективного потенциала (28) от пересыщения при $n_e = 0.1$, $n_\tau = 0.35$, $\kappa = -15$ и накопленных потоках $J_{ac} = 1.5$ (*a*), 0.5 (*b*) и -0.5 (*c*).

когда положительному и отрицательному пересыщениям отвечают примерно одинаковые значения эффективного потенциала. С уменьшением потока J_{ac} до отрицательных значений состояние, отвечающее отрицательным пересыщениям, становится наиболее выгодным (рис. 5, *c*). Это означает стационарное течение процесса, обратного конденсации, т.е. самоорганизованное распыление

предварительно осажденного покрытия, которое представляет разборку конденсата. В отличие от обычного распыления такая работа протекает таким образом, что в ее ходе сначала десорбируются атомы, наиболее слабо связанные с конденсатом, затем — более связанные и т.д. Таким образом, в результате разборки макроструктура конденсата может приобретать весьма сложную архитектуру типа показанной на рис. 1, *b*.

Положения экстремумов потенциала (28) определяются уравнением

$$(n_0 - n_e)(1 + n_0^2) \left[(1 + \kappa) + (n_0/n_\tau)^2 \right] - J_{ac} \left[1 + (n_0/n_\tau)^2 \right] = 0, \quad (29)$$

при анализе которого удобно использовать условие близости к фазовому равновесию $|n_0 - n_e| \ll n_e$. Это позволяет заменить в множителе $(1 + n_0^2)$ стационарную концентрацию n_0 равновесным значением n_e , в результате чего (29) сводится к кубическому уравнению

$$n_0^3 - An_0^2 + Bn_0 - C = 0,$$

$$A = n_e + \frac{J_{ac}}{1 + n_e^2},$$

$$B = n_\tau^2(1 + \kappa), \quad C = n_\tau^2 \left[n_e(1 + \kappa) + \frac{J_{ac}}{1 + n_e^2} \right], \quad (30)$$

поведение корней которого определяется дискриминантом

$$d = \left(\frac{3B - A^2}{9} \right)^3 + \left(\frac{A^3}{27} - \frac{AB}{6} + \frac{C}{2} \right)^2. \quad (31)$$

При $d > 0$ уравнение (30) имеет единственное решение, в обратном случае $d < 0$ реализуются три корня, отвечающие двум минимумам и разделяющему их максимуму (рис. 5). Такая ситуация отвечает прерывистому фазовому переходу.

Из рис. 6, где показана зависимость стационарной концентрации n_0 от накопленного потока J_{ac} , видно, что при

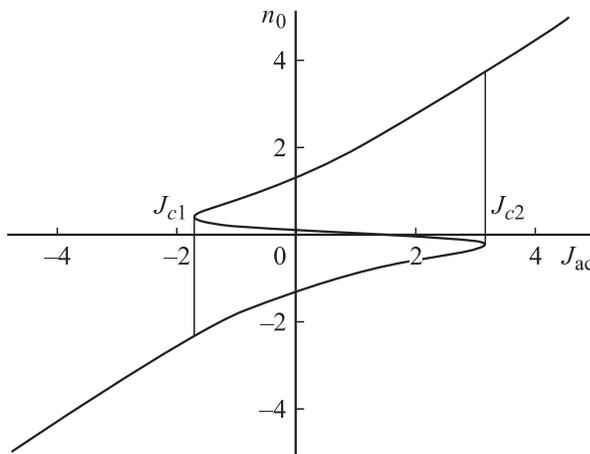


Рис. 6. Зависимость стационарной концентрации n_0 от накопленного потока J_{ac} при $n_e = 0.1$, $n_\tau = 0.35$, $\kappa = -15$.

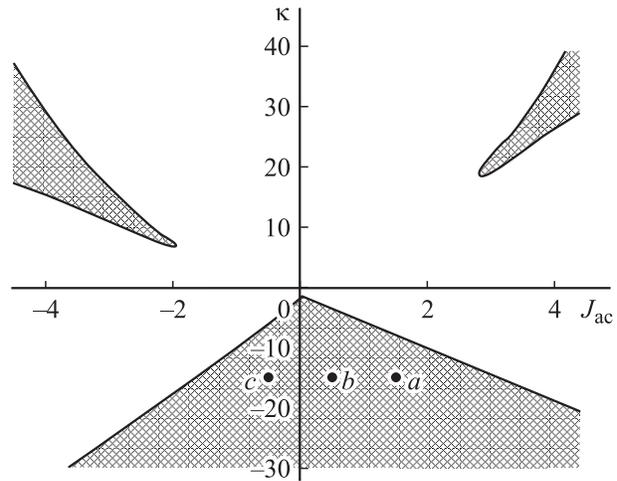


Рис. 7. Фазовая диаграмма возможных состояний системы плазма–конденсат при $n_e = 0.1$, $n_\tau = 0.35$. Штриховкой выделена бистабильная область, точки *a*, *b*, *c* отвечают эффективным потенциалам, показанным на рис. 5, *a–c* соответственно.

больших положительных значениях накопленного потока, когда уравнение (30) имеет единственный корень, система находится в состоянии конденсации. С уменьшением J_{ac} до критического значения J_{c2} , определяемого условием $d = 0$, происходит бифуркация, отвечающая переходу в бистабильное состояние, в котором возможны как конденсация, так и разборка напыленной поверхности. И наконец, при отрицательных значениях накопленного потока $J_{ac} < J_{c1}$, где нижнее критическое значение J_{c1} также определяется условием $d = 0$, система попадает в состояние самоорганизованной разборки поверхности. Как показывает фазовая диаграмма, приведенная на рис. 7, бистабильные состояния реализуются только при больших абсолютных значениях параметра κ , определяющего дисперсию времени релаксации (27).

4. Заключение

Проведенное рассмотрение показывает, что самоорганизация системы плазма–конденсат обеспечивает бистабильный режим конденсации/разборки благодаря флуктуациям потока десорбции адатомов, а флуктуации температуры ростовой поверхности препятствуют установлению такого режима. В результате усиление первого типа флуктуаций, которые играют роль мультипликативного шума, а также инверсия накопленного потока в область отрицательных значений приводят к трансформации унимодального распределения пересыщения осаждаемого компонента в бимодальное. В свою очередь рост параметра λ , обеспечивающий переход от исчисления Ито ($\lambda = 0$) к случаю Стратоновича ($\lambda = 1/2$), отвечающему физической ситуации [16,17], способствует переходу в бимодальный режим. Наряду с этим такой переход обеспечивает дисперсия времени релаксации пересыщения, приводящая к прямой

перестройке непрерывного режима самоорганизации в прерывистый.

Предложенная картина позволяет понять экспериментальные данные [4], согласно которым при низкой мощности разряда реализуется самоорганизованный режим конденсации, в результате которой образуется достаточно плотное покрытие меди, а многократное увеличение этой мощности приводит к значительному разогреву покрытия, при котором оно приобретает ажурную структуру, показанную на рис. 1, *b*. Согласно [4], эта структура образуется в результате самоорганизованной разборки предварительно напыленного конденсата. В отличие от обычного распыления этот процесс протекает в стационарных условиях, обеспечивающих близость к межфазному равновесию, благодаря чему открываются уникальные возможности управлять архитектурой конденсата не только при адсорбции напыляемых атомов, но и в процессе их стационарной десорбции.

Как видно из рис. 4, 5, режим разборки реализуется в условиях, когда в распределении концентрации адатомов (или при соответствующем эффективном потенциале) наиболее ярко выражен левый максимум (минимум), которые отвечают отрицательным значениям пересыщения и накопленного потока. Фазовые диаграммы, приведенные на рис. 3, показывают, что такая ситуация наблюдается при слабо выраженных флуктуациях температуры ростовой поверхности и повышенных значениях интенсивности флуктуаций потока. Поскольку температура является термодинамической величиной, можно полагать, что ее флуктуации всегда достаточно слабы. Что касается флуктуаций потока, то их усиление как раз и обеспечивается ростом мощности разряда, с помощью которого достигнут режим стационарной разборки конденсата в эксперименте [4]. Кроме того, указанное усиление разряда должно способствовать дисперсии времени релаксации пересыщения, благодаря которой режим самоорганизации принимает прерывистый характер и становится возможным процесс разборки предварительно напыленного конденсата.

Авторы выражают благодарность В.И. Перекрёстову за многократные обсуждения экспериментальной ситуации и предоставление электронно-микроскопических изображений конденсатов, показанных на рис. 1.

Список литературы

- [1] В.И. Перекрёстов, А.И. Олемской, А.С. Корнющенко, Ю.А. Косминская. ФТТ **51**, 5, 1003 (2009).
- [2] V.I. Perekrestov, A.I. Olemskoi, Yu.O. Kosminska, A.A. Mokrenko. Phys. Lett. A **373**, 3386 (2009).
- [3] В.И. Перекрёстов, Ю.А. Косминская. Письма в ЖЭТФ **78**, 258 (2003).
- [4] В.И. Перекрёстов. Письма в ЖТФ **31**, 19, 41 (2005).
- [5] В.И. Перекрёстов, А.С. Корнющенко, Ю.А. Косминская. Письма в ЖТФ **32**, 20, 1 (2006).
- [6] В.И. Перекрёстов, А.С. Корнющенко, Ю.А. Косминская. ФТТ **50**, 1304 (2008).
- [7] А.И. Олемской, А.Я. Флат. ФТТ **35**, 3, 542 (1993).
- [8] И.М. Лифшиц, В.В. Слезов. ЖЭТФ **35**, 2, 479 (1958).
- [9] С.А. Кукушкин, А.В. Осипов. УФН **168**, 1083 (1998).
- [10] S.A. Kukushkin, A.V. Osipov. In: Encyclopedia of nanoscience and nanotechnology / Ed. H.S. Nalwa. Am. Sci. Publ. (2004). V. 8. P. 113.
- [11] А.И. Олемской, А.В. Парипский. Изв. вузов. Физика **11**, 122; **12**, 73 (1978).
- [12] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Статистическая физика. Наука, М. (1976). Ч. 1. 584 с.
- [13] Е.М. Лифшиц, Л.П. Питаевский. Физическая кинетика. Наука, М. (1979). 528 с.
- [14] А.И. Олемской, А.А. Кацнельсон. Синергетика конденсированной среды. Едиториал УРСС, М. (2003). 335 с.
- [15] А.И. Олемской. Синергетика сложных систем: Феноменология и статистическая теория. Красанд, М. (2009). 384 с.
- [16] H. Risken. The Fokker–Planck equation. Springer-Verlag Berlin–Heidelberg (1996).
- [17] А.И. Олемской. УФН **168**, 3, 287 (1998).