

УДК 539.216.2

## Особенности кооперативной адсорбции, которая описывается коэффициентом прилипания, зависящим от числа соседей

Э. Г. Манойлов, С. А. Кравченко, Б. А. Снопок

Институт физики полупроводников им. В. Е. Лашкарёва НАН Украины  
просп. Науки, 41, Киев 03028, Украина. E-mail: b\_snopok@yahoo.com

*В рамках неравновесной молекулярной динамики рассчитаны кинетические кривые и моно-слойные кластеры на плоской поверхности для кооперативной адсорбции, когда вероятность прилипания частиц зависит от количества соседей на поверхности. Обнаружено сильное влияние типа распределения коэффициентов прилипания как на динамические, так и на структурные характеристики адсорбционного процесса. Показано, что наиболее информативный алгоритм для классификации типа адсорбции основан на зависимости фрактальной размерности поверхностной структуры от степени покрытия поверхности.*

**Ключевые слова:** кооперативная адсорбция, латеральные взаимодействия, молекулярная динамика, фрактальный анализ, кинетика, топографические исследования, самоподобная поверхностная организация.

Образование поверхностного слоя с повышенной концентрацией газа или растворенного вещества на границе раздела с твердым телом получило название адсорбции [1]. Адсорбция — классический пример процесса поверхностной организации, эволюция которого определяется уменьшением макроскопической величины избыточной поверхностной энергии Гиббса, а движущей силой является микроскопический процесс броуновского движения [2]. В результате экспериментально наблюдаемые проявления адсорбции представляют собой совокупный продукт разнообразных микроскопических процессов различной природы, сочетающихся различным образом в зависимости от свойств поверхности, объемной среды и собственно адсорбирующейся частицы. При этом структура адсорбата, формирующегося в процессе релаксации к равновесному состоянию на границе раздела фаз, характеризуется определенной степенью пространственной организации, т. е. таким упорядоченным расположением частиц или их структур, которые подчиняются определенным операциям симметрии, сдвига и масштабирования [3]. В частности, наличие латеральных взаимодействий частиц в плоскости подложки может приводить к уникальным особенностям адсорбции вследствие процессов самоорганизации, обуславливающих рост упорядоченных пространственных структур вдали от равновесия. Наиболее перспективным способом анализа таких процессов является обобщенный анализ взаимодополняющих проявлений адсорбционного

процесса — кинетики адсорбции и типичных структурных характеристик формирующихся интерфейсных архитектур. В конечном счете это позволяет не только установить физико-химический механизм процесса адсорбции, но и разработать практические способы целенаправленной оптимизации чувствительных элементов сенсорной техники, конструкции катализаторов, сорбентов и т. п.

Классический подход при анализе кинетики адсорбции основан на рассмотрении результата «усредненного» по макросистеме процесса (заполнения поверхности, диффузии, уменьшения концентрации частиц в объеме и т. п.), который обычно хорошо описывается соответствующими дифференциальными уравнениями [1, 2]. В результате большинство феноменологических моделей в принципе не позволяют рассматривать пространственную организацию поверхностных кластеров, поскольку они не учитывают отличия в выигрыше поверхностной энергии при образовании той или иной части адсорбата. Вместе с тем анализ именно таких поверхностных кластеров привлекает все большее внимание, поскольку современные средства микроскопии позволяют все более точно визуализировать структуры адсорбционного происхождения в процессах, имеющих жизненно важное значение в различных областях человеческой деятельности. Так, например, согласно [4] именно белковые кластеры амилоид-бета пептида (amyloid-beta (A $\beta$ ) peptide) являются спе-

цифическими маркерами развивающейся болезни Альцгеймера. Формирование же зародышей микробиологических колоний, образующихся вследствие адсорбции микроорганизмов на поверхности металлических конструкций мостов, речных и морских судов и т. п., являются первопричиной их последующей деструкции [5]. Таким образом, все большую практическую и особенно прогностическую значимость приобретают экспериментальные методы анализа поверхностных кластеров, поскольку это позволяет предсказать последующее развитие наблюдаемого процесса. Вместе с тем для решения обратной задачи — идентификации потенциально опасных ситуаций и выяснения тех особенностей элементарных компонент системы, которые привели к формированию наблюдаемых кластеров, — необходимо разработать алгоритмы «паспортизации» поверхностных структур адсорбционного происхождения и связать их уникальные черты с особенностями сформировавшихся их частиц (таких, как способность к латеральным взаимодействиям, например).

Отличительной особенностью рассмотренных выше систем является формирование поверхностных кластеров, составляющие элементы которых являются дискретными и характеризуются способностью к специфическим, пространственно-направленным взаимодействиям. Для моделирования таких систем целесообразно использовать методы молекулярной динамики дискретных сред, когда движение всего набора частиц описывается классическими уравнениями движения в рамках механики Ньютона [6, 7]. Большинство современных моделей молекулярной динамики направлено на анализ равновесных конфигураций различных молекулярных ансамблей [8]. В то же время анализ неравновесных процессов обычно сводят к моделям клеточных автоматов и т. п., пренебрегая процессами движения частиц в непосредственной близости от поверхности [9, 10]. При этом гетерогенную систему на границе раздела фаз рассматривают без учета локального окружения частиц в области адсорбционного центра. В соответствии с этим цель настоящей работы состоит в компьютерном моделировании процессов роста поверхностных кластеров из потока частиц, обладающих способностью к анизотропному латеральному взаимодействию на поверхности, и выяснение особенностей их структуры для различных типов необратимой адсорбции.

С целью практической реализации методов молекулярной динамики для анализа процессов адсорбции нами разработана оригинальная программная среда, которая позволяет в реальном режиме времени визуализировать структуру адсорбата из частиц, характеризующихся наличием анизотропного лате-

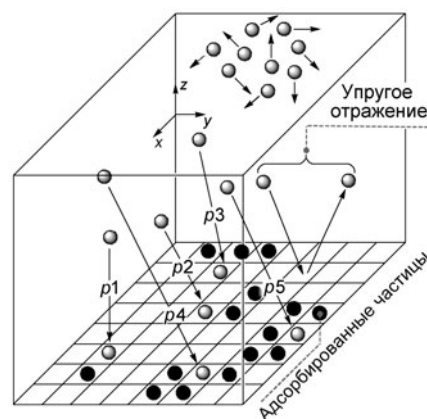


Рис. 1. Конфигурация виртуального реакционного пространства, представляющая собой совокупность объема с постоянным числом частиц и температурой, адсорбирующей поверхности и упругих стенок. Движение свободных частиц происходит по баллистическим траекториям без столкновений со скоростями, распределенными в соответствии с законом Максвелла. Вероятность необратимого связывания частицы с поверхностью в пределах монослоя зависит от числа ближайших соседей ( $p1-p8$ ).

рального взаимодействия, рассчитывать кинетику адсорбции, анализировать распределение частиц в приповерхностной области [11]. Алгоритм был реализован в среде программирования Delphi и может выполняться в операционной системе MS Windows. Данный подход позволяет на любом промежутке времени получать конфигурацию адсорбционных кластеров и совместим по формату графических данных со стандартными пакетами обработки топографических данных, таких как, например, свободно распространяемый программный продукт Gwyddion и т. п. В настоящей работе подробно рассмотрен режим необратимой монослойной кооперативной адсорбции (кинетики и структуры адсорбата), в которой коэффициент прилипания зависит от числа ближайших к центру связывания соседей. Особое внимание уделено анализу условий возникновения организованных структур с различной степенью упорядочения на поверхности.

Моделируемая система состоит из ансамбля одинаковых частиц при температуре  $T$  в ограниченном объеме реакционного пространства, каждая из которых характеризуется массой  $m$ , координатами и импульсом (рис. 1). Поведение частиц в реакционном пространстве и на поверхности описывается на основе локальных правил и уравнений движения для каждой отдельной частицы. Скорость частиц в трехмерном реакционном пространстве прямоугольной формы задается распределением Максвелла. Верхняя и боковые стенки ограничивают реакцион-

Таблица 1

**Коэффициенты прилипания адсорбирующейся частицы (черный кружок) к поверхности в зависимости от локального окружения центра связывания (белые кружки — уже присутствующие на поверхности частицы) для различных типов адсорбции I—VII**

Тип адсорбции	Коэффициенты прилипания								
	$p_0$	$p_1$	$p_2$	$p_3$	$p_4$	$p_5$	$p_6$	$p_7$	$p_8$
I	0,0001	0,0009	0,0025	0,0067	0,0183	0,0498	0,1353	0,3679	1,0000
II	0,0001	0,0156	0,0625	0,1406	0,2500	0,3906	0,5625	0,7656	1,0000
III	0,0001	0,1250	0,2500	0,3750	0,5000	0,6250	0,7500	0,8750	1,0000
IV	0,0001	0,2344	0,4375	0,6094	0,7500	0,8594	0,9375	0,9844	1,0000
V	0,0001	0,6321	0,8647	0,9502	0,9817	0,9933	0,9975	0,9991	1,0000
VI	1,0000	1,0000	1,0000	1,0000	1,0000	1,0000	1,0000	1,0000	1,0000
VII	1,0000	0,8750	0,7500	0,6250	0,5000	0,3750	0,2500	0,1250	0,0001

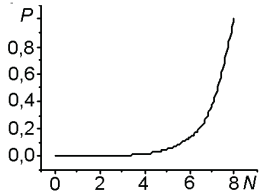
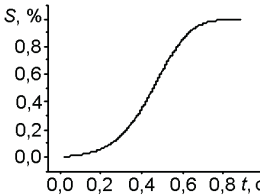
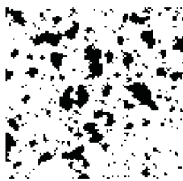
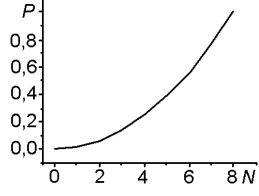
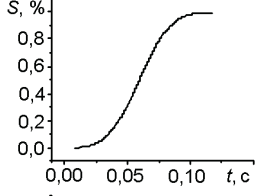
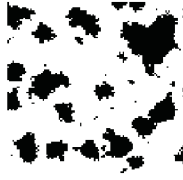
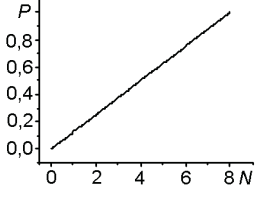
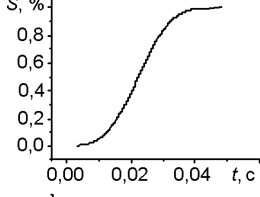
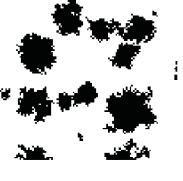
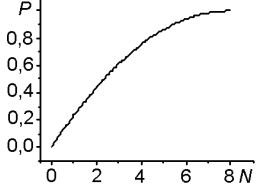
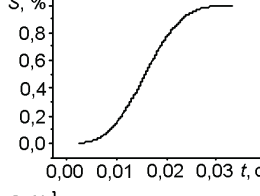
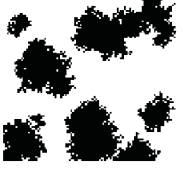
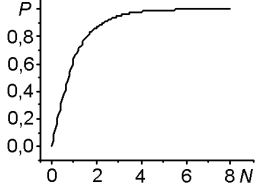
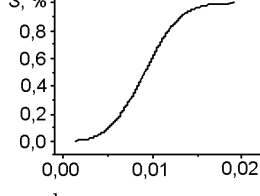
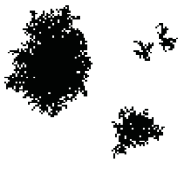
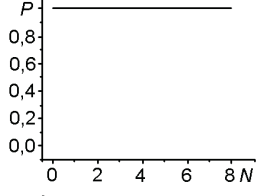
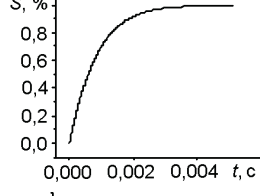

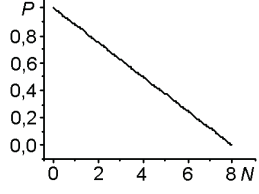
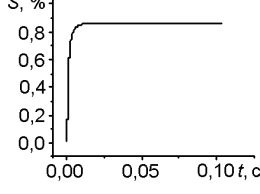

ное пространство и моделируют типичные условия, характерные для измерений в химических сенсорах аффинного типа: взаимодействие частиц со всеми стенками реакционного пространства является абсолютно упругим. Между собой в объеме частицы не взаимодействуют и не сталкиваются (предел баллистического движения). Коэффициент прилипания частицы к поверхности зависит от числа ближайших к центру связывания соседей, т. е. от количества ранее адсорбированных частиц, которых в окружении центра прилипания может находиться от 0 до 8 (табл. 1). Для соблюдения не только общности рассмотрения, но и удобства представления распределение коэффициентов прилипания для различного числа соседей задается некоторой аналитической функцией; отличия в коэффициенте прилипания для различных конфигураций при одинаковом числе частиц ближайшего окружения в настоящей работе не учитываются. Таким образом, тип адсорбции задается некоторым набором независимых констант, которые определяют коэффициенты прилипания ( $p_0$ — $p_8$ ) частицы к поверхности в зависимости от ее локального окружения. В качестве типичных распределений коэффициентов прилипания от числа частиц окружения  $N$  рассмотрены экспоненциальная (I), квадратичная (II), линейная (III), обратно-квадратичная (IV), обратно-экспоненциальная (V), изотропная (VI) и обратно-линейная (VII) зависимости

(табл. 2). Распределения I—V относятся к кооперативному, VI — изотропному, а VII — антикооперативному типу адсорбции. В настоящей работе мы рассматриваем необратимую монослойную адсорбцию из бесконечного источника — после прикрепления частицы к поверхности в реакционное пространство добавляется новая частица так, чтобы энергия системы и число частиц в объеме оставались неизменными. Такая процедура не изменяет распределение частиц в объеме, поскольку число добавляемых случайным образом частиц при каждой отдельной итерации существенно меньше общего числа частиц в системе.

Алгоритм вычислений заданной модельной системы осуществляли следующим образом. После произвольного размещения частиц в объеме реакционного пространства рассчитывали новые положения каждой частицы через заданное время  $dt$ . Если частица оказывалась за пределами верхней и боковых стенок, то ее новое положение рассчитывали в соответствии с законом упругого отражения. Если частица пересекала адсорбирующую поверхность, то определяли вероятность прилипания частицы к поверхности на данном шаге итерации в зависимости от числа частиц окружения центра связывания. На основе получаемого значения вероятности определяли, прикрепится ли частица к поверхности или упруго отразится от нее. В результате моделирования наблюдали дина-

Таблица 2

Типичные динамические (кривая кинетики адсорбции) и структурные (топография поверхностных кластеров) проявления различных типов адсорбции I—VII, задаваемых распределением коэффициента прилипания частицы к поверхности от числа частиц-соседей в ближайшей окрестности центра связывания. Для кинетических кривых масштаб оси абсцисс различен

Тип адсорбции	Зависимости коэффициента прилипания от числа частиц окружения $N$	Зависимость степени заполнения поверхности от времени (кинетические кривые)	Изображения поверхности при 20 % ее заполнении	Классификация типов адсорбции
I				Экспоненциально-кооперативная
II				Квадратично-кооперативная
III				Линейно-кооперативная
IV				Обратно-квадратичная кооперативная
V				Обратно-экспоненциальная кооперативная
VI				Изотропная
VII				Обратно-линейная антикооперативная

мику формирования поверхностных структур и строили кинетическую зависимость степени заполнения поверхности от времени —  $S(t)$ . Моделирование проводили для  $N = 2,5 \cdot 10^6$  частиц в реакционном пространстве объемом  $V = 1 \times 1 \times 1$  м; масса отдельной частицы  $m = 5,3 \cdot 10^{-26}$  кг (~32 Да) при температуре  $T = 300$  К. Число центров прикрепления частиц на поверхности при монослойной адсорбции составляло  $A = 2,5 \cdot 10^5$ , а дискретизация времени —  $\Delta t = 10^{-5}$  с. Следует отметить, что выбранная величина соотношения частиц на поверхности и в реакционном пространстве (1 : 10) хорошо соответствует таковой для практически важных концентраций анализита в биохимических сенсорных системах поверхностного типа [12, 13]; абсолютные величины этих параметров определяют длительность вычислительного эксперимента и размер области поверхности, доступный для последующего анализа, однако не влияют на характер процессов в объеме реакционного пространства для рассмотренного случая баллистического движения без столкновений. Более того, выбор величин пространственных размеров также достаточно условен, поскольку геометрические размеры реакционного пространства обусловлены средней скоростью частиц и временной дискретизацией процедуры вычислительного эксперимента, которая может варьироваться в широком диапазоне значений. Конкретные величины параметров моделирования не влияют на общность полученных результатов, поскольку специфические характеристики рассчитанных зависимостей определяются относительными величинами скоростей частиц (в соответствии с распределением Максвелла), распределением величин коэффициентов прилипания (заданный тип адсорбции) и соотношением частиц на поверхности и в объеме реакционного пространства.

В табл. 2 представлены типичные изображения структур, сформированные при  $S = 20$  % заполнении поверхности, и кинетические кривые для различных типов адсорбции. Как видно из приведенных в таблице изображений, при кооперативном типе адсорбции (типы I—V), когда коэффициент прилипания частицы к поверхности увеличивается при увеличении числа частиц-соседей, наблюдается формирование компактных поверхностных кластеров. При этом размер и форма образованных кластеров зависят от конкретного вида распределения коэффициента прилипания, в частности особенностей изменения величины угла наклона кривых вероятностных характеристик (табл. 2). Так, например, тенденция к укрупнению поверхностных кластеров наблюдается в случае увеличения угла наклона кривой на начальном участке. Для случаев, когда имеет место уменьшение угла наклона кривой на конечном

участке вероятностного распределения, увеличивается рыхлость поверхности укрупненных зерен. В случае же, когда угол наклона равен нулю или имеет отрицательную величину, формирование кластеров не наблюдается (типы адсорбции VI и VII).

Кривые кинетики для кооперативных типов адсорбции имеют вид S-образной кривой, что объясняется низкой вероятностью прилипания одиночных частиц к свободной поверхности. С увеличением числа зародышей (центров нуклеации), вероятность прикрепления последующих частиц возрастает, обуславливая более быстрый темп заполнения поверхности; затем с течением времени скорость роста поверхностного покрытия снижается вследствие уменьшения числа мест, доступных для прикрепления. При переходе от типа I к типу V наблюдается значительное уменьшение времени выхода кинетической зависимости на насыщение и времени полного заполнения поверхности. Для изотропного типа адсорбции (VI) характерные времена оказываются еще меньшими, чем в случае V. Как и следовало ожидать, скорость роста поверхностного покрытия на начальном участке для антикооперативного типа оказывается сопоставимой со скоростью для изотропного типа адсорбции. Отличие состоит лишь в том, что кривая кинетики выходит на насыщение уже при заполнении приблизительно 85 % от полной площади поверхности и дальнейшая скорость заполнения оказывается очень низкой.

Сформированные поверхностные структуры можно охарактеризовать с использованием стандартных статистических процедур топографического анализа (например, число кластеров на единицу площади  $n$ , средняя площадь кластеров  $s$ , их средний размер  $r$  и т. п.), которые, однако, не позволяют выделить специфические для конкретного типа адсорбции значения той или иной величины. Комбинированные параметры, например такие, как степень округлости отдельных кластеров  $k$ , вычисляемая по формуле  $k = \log(s)/\log(r)$  (чем ближе  $k$  к 2, тем зерна более округлые), и отношение числа частиц в кластере к степени его округлости ( $n/k$ ), несколько улучшают ситуацию, однако в целом также оказываются малоинформативными. Наилучшие результаты дает подход, основанный на вычислении коэффициента линейной регрессии  $Q$  зависимости площади всех кластеров на поверхности от длины их границ. Результаты такого анализа поверхностных кластеров с использованием процедур топографического анализа программной среды Gwyddion (версия 2.45, Институт метрологии Чехии) представлены на рис. 2, а в виде зависимости коэффициента наклона  $Q$  линейной регрессии от типа адсорбции для различных величин степени заполнения поверхности  $S$ . Для экспонен-

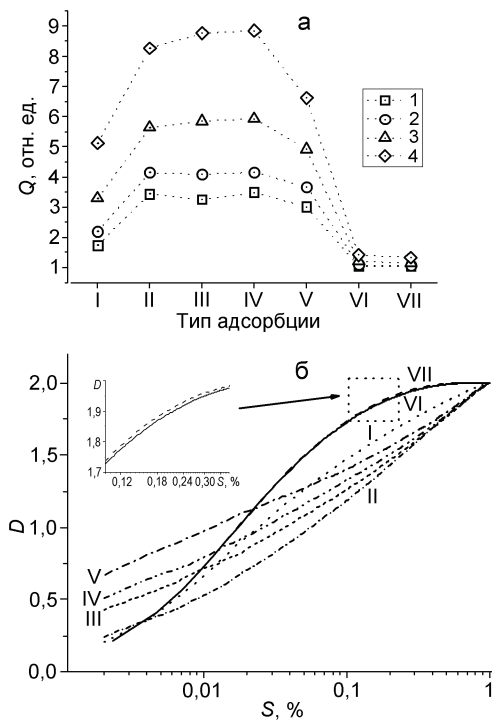


Рис. 2. Статистические способы классификации поверхностных структур адсорбционного происхождения для различных типов адсорбции I—VII (см. табл. 2): *a* — зависимость коэффициента линейной регрессии  $Q$  площади кластеров от длины их границ при различных степенях заполнения поверхности: 1 — 4, 2 — 8, 3 — 20, 4 — 40 %; *б* — зависимость фрактальной размерности Минковского  $D$  от степени заполнения поверхности  $S$  для различных типов адсорбции. Вставка — увеличенный фрагмент в области высоких степеней заполнения.

циально-кооперативного (I), изотропного (VI) и антикооперативного (VII) типов адсорбции величины  $Q$  заметно отличаются от остальных типов кооперативной адсорбции, однако разделить типы II—V с помощью данного параметра также не представляется возможным. Необходимо отметить, что в случае кооперативных типов адсорбции рассматриваемые зависимости хорошо аппроксимируются степенными функциями, что свидетельствует о самоподобии структуры данных поверхностных кластеров.

С целью подробного анализа данного результата нами использован метод параметризации особенностей поверхностных кластеров, основанный на принципах фрактального формализма [14—16]. Как известно, для систем, в которых наблюдается масштабная инвариантность (самоподобие), наиболее емким и одновременно информативным из всех возможных способов описания пространственной структуры является фрактальная размерность [17, 18]. Фрактальный анализ любого множества объектов выделяет в нем те структуры, которые удов-

летворяют определенным правилам симметрии и масштабирования, т. е. выделяет из зашумленного стохастическими влияниями объема данных ту «путеводную нить», которая в данном случае определяет согласованное развитие процессов роста покрытия на разных пространственных масштабах. Причина наличия и особенности таких «скрытых» симметрий в структуре кластеров как раз и обусловлены видом распределения коэффициентов прилипания  $p_0—p_8$  для различных типов адсорбции. Эти величины единообразно управляют параметрами процесса роста покрытия во всем диапазоне рассматриваемых пространственных масштабов. Поскольку нас интересовал наиболее универсальный и удобный с практической точки зрения способ расчета фрактальной размерности для изображений реальных объектов, мы использовали вычисление фрактальной размерности по Минковскому. Согласно [19] фрактальная размерность ограниченного множества в метрическом пространстве может быть вычислена следующим образом:

$$D = \lim_{\rho \rightarrow 0} \frac{\log N(\rho)}{-\log \rho},$$

где  $N(\rho)$  минимальное число множеств диаметра  $\rho$ , которыми можно покрыть исходное множество. Для программной реализации использовали метод подсчета квадратов, заключающийся в определении отношения логарифма числа квадратов, содержащих хотя бы один пиксель изображения, который соответствует адсорбированной частице, к логарифму размера стороны квадрата. Тогда, определяя скорость изменения отношения логарифмов путем построения линейной регрессии, размерность Минковского будет вычисляться по выше приведенной формуле. Для построения динамической зависимости фрактальной размерности от степени заполнения поверхности  $D(S)$  или от времени  $D(t)$  обрабатывали полномасштабный набор изображений, полученных для выбранного типа адсорбции.

На рис. 2, *б* в логарифмическом масштабе представлено изменение фрактальной размерности изображений поверхностных структур, сформированных при различных типах адсорбции, в зависимости от степени заполнения поверхности. Видно, что изменение фрактальных характеристик различно для каждого типа адсорбции и, что особенно важно, позволяет однозначно разделить типы (II—IV), которые не удавалось отличить в подходе, основанном на скалярных статистических характеристиках поверхностных ансамблей [17, 18].  $S$ -образная форма кривых наблюдается для типов VI, VII и частично для экспоненциально-кооперативного типа (I), причем

изменение фрактальной размерности при увеличении степени заполнения поверхности для изотропного (VI) и обратно-линейного антикооперативного (VII) типов адсорбции практически совпадают. В то же время для кооперативных типов (II—V) характер изменения величины  $D$  уникален и отличается следующими особенностями: на начальных этапах заполнения поверхности наблюдается существенная разница величин фрактальной размерности (для типа V она максимальна), в то время как при заполнении поверхности  $D$  приближается к топологическому значению 2, соответствующему евклидовой плоскости; наблюдается изменение угла наклона кривой фрактальной зависимости  $D(S)$  при увеличении заполнения  $S$  (максимальный наклон наблюдается для типа II).

Оба представленных нами подхода, как видно из проведенного анализа, адекватно отражают особенности поверхностной организации при различных типах адсорбции и дополняют друг друга. Они иллюстрируют статистический и динамический подход к анализу изображений поверхности. Так, например, показано, что для экспоненциально-кооперативного (I), изотропного (VI) и обратно-линейного антикооперативного (VII) типов адсорбции наблюдается корреляция величин  $Q$  и  $D$ . Вместе с тем именно использование фрактального формализма позволило сформировать уникальные маркеры различных кооперативных процессов в виде зависимостей, представленных на рис. 2, б.

Таким образом, с использованием разработанного нами метода динамического латерально зависимого моделирования процессов необратимой монослойной адсорбции показано, что особенности организации поверхностных структур адсорбционного типа определяются распределением коэффициентов латерального взаимодействия частицы в окрестности центра связывания на поверхности. Впервые установлена взаимосвязь между типом адсорбции с заданным распределением коэффициента прилипания (от числа частиц-соседей на поверхности) и пространственной структурой кластеров адсорбата, с одной стороны, и изменением их фрактальной размерности  $D$  наряду с коэффициентом наклона линейной регрессии  $Q$  отношения площади зерен к длине их границ — с другой. Показано, что использование именно фрактального подхода для формирования уникальных маркеров адсорбционного процесса подтверждает то положение, что значимыми (несущими информацию о системе) являются не все элементы изображения, а лишь те области определенных нерегулярностей, для которых характерна масштабная инвариантность [20]. Изменение обобщенного параметра — фрактальной размерности,

отражающей свойство таких нерегулярностей, — является наилучшими «паспортными данными» сложной открытой нелинейной системы, эволюционирующей в неравновесных условиях, обусловленных наличием незаполненной адсорбирующей поверхности.

Представленная нами вычислительная модель кинетики адсорбционных процессов кооперативного типа, реализованная в рамках концепции неравновесной молекулярной динамики, позволила учесть особенности движения частиц в реакционном пространстве (обусловленные максвелловским распределением по скоростям и наличием самой поверхности) и впервые продемонстрировать влияние различных типов кооперативного взаимодействия на характер формирования адсорбционного покрытия. Эта особенность принципиально отличает представленный подход от моделей на основе алгоритмов клеточных автоматов, в которых рассматриваются только процессы, происходящие на адсорбирующей поверхности. Разработанный метод открывает новые возможности для решения обратной задачи — определение типа адсорбции и специфических особенностей участвующих в них частиц (вида распределения коэффициента прилипания) на основании анализа сформированных ими поверхностных структур на границе раздела фаз.

Работа выполнена при поддержке проекта SPS 985140 в рамках программы НАТО «Наука ради мира и безопасности» и проектов НАН Украины по сенсорной технике.

### Литература

1. *Dabrowski A.* // Adv. Colloid and Interface Sci. — 2001. — **93**. — P. 135—224.
2. *Мясников И. Я., Сухарев В. Я., Куприянов Л. Ю., Завьялов С. А.* Полупроводниковые сенсоры в физико-химических исследованиях. — М.: Наука, 1991.
3. *Громашевский В. Л., Татьянаенко Н. П., Снопко Б. А.* // Теорет. и эксперим. химия. — 2015. — **51**, № 3. — С. 163—170. — [Theor. Exp. Chem. — 2015. — **50**, N 3. — P. 170—176 (Engl. Transl.)].
4. *Hu X., Crick S. L., Bu G. et al.* // PNAS. — 2009. — **106**. — P. 20324—20329.
5. *Videla H. A., Herrera L. K.* // Int. Microbiology. — 2005. — **8**. — P. 169—180.
6. *Leimkuhler B., Matthews C.* Molecular dynamics: with deterministic and stochastic numerical methods. — London: Springer, 2015.
7. *Хельтве Х. Д., Зипль В., Роньян Д., Фолькерс Г.* Молекулярное моделирование (теория и практика). — М.: БИНОМ. Лаборатория знаний, 2010.
8. *Метод молекулярной динамики в физической химии* / Ред. Ю. К. Товбин. — М.: Наука, 1996.

9. Guo L., Xiao L., Shan X., Zhang X. // Sci. Rep. — 2016. — 6. — 27134.
10. Chopard B., Droz M. Cellular automata modeling of physical systems. — New York : Cambridge univ. press, 2005.
11. Манойлов Э. Г., Кравченко С. А., Снопок Б. А. // Оптоэлектроника и полупроводниковая техника. — 2016. — 51. — С. 88—93.
12. Снопок Б. А., Болтовец П. Н., Ровелл Ф. Д. // Теорет. и эксперим. химия. — 2006. — 42, № 2. — С. 96—101. — [Theor. Exp. Chem. — 2006. — 42, N 2. — P. 106—112 (Engl. Transl.)].
13. Снопок Б. А. // Теорет. и эксперим. химия. — 2012. — 48, № 5. — С. 265—285. — [Theor. Exp. Chem. — 2012. — 48, N 5. — P. 283—306 (Engl. Transl.)].
14. Mandelbrot B. B. The fractal geometry of nature. — San Francisco : Freeman, 1982.
15. Федер Е. Фракталы — М. : Мир, 1991.
16. Смирнов Б. М. Физика фрактальных кластеров. — М. : Наука, 1991.
17. Snopok B. A., Strizhak P. E., Kostyukevich E. V. et al. // Semicond. Phys. Quantum Electron. and Optoelectron. — 1999. — 2, N 3. — P. 86—97.
18. Strizhak P. E., Snopok B. A., Melnik T. et al. // Proc. of SPIE. — 1999. — 3904. — P. 374—385 (DOI 10.1117/12.370427).
19. Falconer K. Fractal geometry: mathematical foundations and applications. — Chichester : John Wiley, 1990.
20. Снопок Б. А. // Теорет. и эксперим. химия. — 2014. — 50, № 2. — С. 69—93. — [Theor. Exp. Chem. — 2014. — 50, N 2. — P. 67—95 (Engl. Transl.)].

Поступила в редакцию 30 ноября 2016 г.  
В окончательном варианте 9 января 2017 г.

## Особливості кооперативної адсорбції, яка описується коефіцієнтом прилипання, що залежить від кількості сусідів

Е. Г. Манойлов, С. О. Кравченко, Б. А. Снопок

Інститут фізики напівпровідників ім. В. Є. Лашкарьова НАН України  
просп. Науки, 41, Київ 03028, Україна. E-mail: b\_snopok@yahoo.com

*У рамках нерівноважної молекулярної динаміки розраховано кінетичні криві і моношарові кластери на плоскій поверхні для кооперативної адсорбції, коли ймовірність прилипання частинок залежить від кількості сусідів на поверхні. Виявлено сильний вплив типу розподілу коефіцієнтів прилипання як на динамічні, так і на структурні характеристики адсорбційного процесу. Показано, що найінформативніший алгоритм для класифікації типу адсорбції засновано на залежності фрактальної розмірності поверхневої структури від ступеня покриття поверхні.*

**Ключові слова:** кооперативна адсорбція, латеральні взаємодії, молекулярна динаміка, фрактальний аналіз, кінетика, топографічні дослідження, самоподібна поверхнева організація.

## Features of Cooperative Adsorption, which is Described by Sticking Probability that Depends on the Number of Neighbors

E. G. Manoïlov, S. A. Kravchenko, B. A. Snopok

V. E. Lashkaryov Institute of Semiconductor Physics, National Academy of Sciences of Ukraine  
Prosp. Nauky, 41, Kyiv 03028, Ukraine. E-mail: b\_snopok@yahoo.com

*Within the equilibrium molecular dynamics the kinetic curves and monolayer clusters were calculated on a flat surface for cooperative adsorption when the probability of particle adhesion depends on the number of neighbors on the surface. A strong influence of the type of distribution of sticking probability on both dynamic and structural characteristics of the adsorption process was found. It was shown that the most informative algorithm for classifying the type of adsorption is based on the dependence of the fractal dimension of the surface structure on the degree of surface coverage.*

**Key words:** cooperative adsorption, lateral interactions, molecular dynamics, fractal analysis, kinetics, topography study, self-similar surface organization.