

Universidade Estadual de Campinas

Instituto de Física ‘Gleb Wataghin’

**Simulação de crescimento epitaxial
e formação de interfaces por
método Monte Carlo**

Vitor Rafael Coluci

Orientadora: Profa. Dra. Mônica Alonso Cotta

Banca Examinadora

Mônica Alonso Cotta (orientadora - IFGW/UNICAMP)

Maurício Urban Kleinke (IFGW/UNICAMP)

Antônio José Roque da Silva (IF/USP)

Peter Alexander Bleinroth Schulz (IFGW/UNICAMP)

Alain André Quivy (IF/USP)

Tese apresentada ao Instituto de Física ‘Gleb Wataghin’
da Universidade Estadual de Campinas como parte dos
requisitos à obtenção do título de Mestre em Ciências -
Julho 2000

*Aos meus pais, Sônia e Sidney,
meus irmãos, Valmir e Vanderson,
e à minha avó Santa
pelo amor, apoio e carinho.*

“ O que dignifica o homem como ser ativo no meio em que vive não é o tipo de atividade que ele exerce mas a qualidade do produto final.”

Anônimo



Ária na 4ª corda - J. S. Bach

Agradecimentos

Gostaria de fazer um agradecimento especial à Profa. Mônica pela orientação, apoio e exemplo a mim apresentados no decorrer desses 5 anos.

Agradeço também

- ao pessoal do laboratório Klaus, Humberto, Roberto, Walter e Leonardo pelas frutíferas discussões profissionais e não-profissionais que tanto me ajudaram;
 - à Márcia pela ajuda com os serviços burocráticos;
 - ao Prof. César Mendonça pelo exemplo e ajuda dados na fase inicial desse trabalho;
 - ao Prof. Mauro Carvalho, ao Jeferson e à Kimie pela solução de inúmeras dúvidas;
 - ao Eduardo e ao Antônio (Totó) pelos momentos de confraternização;
 - ao Centro de Computação J. D. Rogers pela ajuda na resolução dos problemas técnicos;
 - ao pessoal da Biblioteca do Instituto de Física pela simpatia e compreensão;
 - à Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo (FAPESP) pelo apoio financeiro desse trabalho;
- e às demais pessoas que não estão citadas aqui mas que influenciaram direta ou indiretamente a execução desse trabalho.

Em memória do amigo e professor Manoel Moita Filho pela sua dedicação ao ensino de Física.

Resumo

Os processos cinéticos - difusão e adsorção - responsáveis pela formação de estruturas superficiais na interface sólido-vapor durante a epitaxia de filmes finos cristalinos foram estudados usando o método Monte Carlo Cinético. O crescimento epitaxial foi simulado computacionalmente baseando-se no modelo *Solid-on-Solid* (SOS). Supõe-se que o cristal possui uma estrutura cúbica simples e que a dinâmica do crescimento pode ser descrita por átomos de apenas uma espécie. A adsorção segue uma taxa constante enquanto que o processo de difusão dos átomos na superfície, associado ao comportamento de osciladores harmônicos bidimensionais, obedece uma taxa tipo Arrhenius.

A simulação da evolução da superfície do filme crescido permitiu observar a transição entre modos de crescimento durante a variação da temperatura de crescimento. Com a inclusão da barreira Schwoebel ao modelo verificou-se a formação e evolução de estruturas de formato piramidal. Diferentes morfologias foram obtidas quando diferentes origens de anisotropia foram consideradas. Estudamos detalhadamente a influência de um caso particular de substrato rugoso na evolução dos filmes. Esse estudo possibilitou tanto a reprodução qualitativa dos principais aspectos de resultados experimentais de homoepitaxia de GaAs realizada por epitaxia de feixe químico como a confirmação da existência de uma barreira Schwoebel desprezível para esse sistema.

Abstract

The kinetic processes - diffusion and adsorption - responsible by the formation of surface structures at the solid-vapour interface during the epitaxy of crystalline thin films were studied using the Kinetic Monte Carlo method. The computational simulation of epitaxial growth was based on the Solid-on-Solid (SOS) model. A simple cubic structure was used for the description of the crystal and the growth dynamics was described by one-specie atoms only. A constant rate describes the adsorption while the diffusion process of the atoms on the surface, associated to the behavior of bidimensional harmonic oscillators, obeys an Arrhenius rate.

The simulation of the surface evolution of the grown film was able to reproduce the transition between growth modes during with the change of the growth temperature. The formation and evolution of pyramidlike structures were observed when the Schwoebel barrier was included in the model. Different kinds of morphologies were achieved when different origins for anisotropy were considered. We have studied in detail the influence of a particular case of rough substrates on the film evolution. This study qualitatively reproduced the main aspects of experimental results on GaAs homoepitaxy by chemical beam epitaxy and confirmed the existence of a negligible Schwoebel barrier for this system.

Índice

Resumo	iv
Abstract	v
1 Introdução	1
1.1 Crescimento Epitaxial	2
1.1.1 Técnicas de Crescimento Epitaxial	2
1.1.2 Processos Físicos	3
1.2 Teoria	6
1.3 Objetivos do trabalho	8
2 Modelo	9
2.1 Método Monte Carlo	9
2.2 Modelo de crescimento	11
2.3 Metodologia	13
3 Resultados	16
3.1 Transições entre modos de crescimento	16
3.2 Influência da barreira Schwoebel	22
3.3 Estudo do comprimento de difusão	25
3.4 Influência da anisotropia superficial	29
3.5 Superfícies iniciais rugosas	35
4 Conclusões	48

Referências Bibliográficas	50
-----------------------------------	-----------

Apêndices

A Programa de simulação de crescimento epitaxial	56
A.1 Descrição do programa	56
A.2 Testes	61
B Expoentes de Escala	65
C Efeito hidrogênio	68
C.1 Discussão do problema	68
C.2 Alteração do modelo	69
C.3 Resultados	71
D Lista de publicações	77

Capítulo 1

Introdução

O grande avanço tecnológico na área de produção de dispositivos semicondutores como transistores, diodos e lasers foi devido, em grande parte, ao surgimento e evolução de técnicas de crescimento epitaxial de filmes finos cristalinos. Essas técnicas proporcionam um controle extremamente preciso de características físicas dos filmes crescidos como por exemplo espessura, qualidade morfológica da superfície, composição e dopagem.

Juntamente com o crescimento do filme, a sua caracterização exerce um papel fundamental. Através de técnicas de microscopia ou de análise de propriedades óticas e elétricas foi possível entender e solucionar problemas tanto de caráter tecnológico como de física básica.

Do ponto de vista teórico, trabalhos envolvendo estudos analíticos [1-8] ou simulação computacional [9-18] da evolução do crescimento vem apresentando resultados compatíveis com os obtidos experimentalmente. Dessa forma os estudos teóricos se mostram como uma ferramenta poderosa para entender os processos físicos presentes no crescimento epitaxial.

Em particular, trabalhos de simulação computacional utilizando o método Monte Carlo têm permitido a comparação direta entre teoria e experimento através de estudos da evolução da largura e da morfologia da superfície do filme que está sendo crescido. Portanto a simulação Monte Carlo ocupa um importante espaço no estudo dos aspectos fundamentais da dinâmica do crescimento epitaxial. Os resultados gerados nesse estudo permitem tanto ampliar nosso conhecimento sobre processos superficiais microscópicos quanto a sua aplicação tecnológica, em novos dispositivos ou na melhoria dos já existentes.

1.1 Crescimento Epitaxial

Epitaxia ou crescimento epitaxial consiste na produção de filmes finos cristalinos através da deposição de átomos ou moléculas sobre um substrato (cristal) aquecido. No caso de homoepitaxia, o crescimento produz filmes com características físicas e estruturais iguais às do substrato. O substrato funciona, dessa maneira, como um modelo que será seguido pelo filme a ser formado.

Com a deposição dos átomos sobre a superfície do substrato ocorre uma perturbação no estado de equilíbrio dessa superfície. Como o substrato se encontra, em geral, aquecido, os átomos da superfície podem romper suas ligações químicas com seus vizinhos e assim se movimentarem ao longo da superfície. Esse processo muda a morfologia do filme e tenta reestabelecer o estado de equilíbrio deste, ou seja, minimizar o número de ligações pendentes (ou a energia livre superficial). Dessa maneira a morfologia final de um filme crescido é o resultado de um fenômeno fora de equilíbrio envolvendo a interação de um número muito grande de átomos. Essa interação é influenciada tanto por propriedades extrínsecas do material - como a temperatura em que se mantém o substrato, a taxa de deposição ou a morfologia inicial do crescimento - como por propriedades intrínsecas - como o tipo de rede cristalina ou de ligação que os átomos fazem entre si.

1.1.1 Técnicas de Crescimento Epitaxial

Nesse trabalho analisaremos resultados obtidos por duas técnicas de crescimento, Epitaxia por Feixe Molecular (MBE - do inglês *Molecular Beam Epitaxy*) e Epitaxia por Feixe Químico [19](CBE - do inglês *Chemical Beam Epitaxy*). As duas técnicas usam essencialmente uma câmara - mantida em ultra-alto vácuo ($\cong 10^{-9} \text{ torr}$) - onde é colocado o substrato. Os componentes do material a ser crescido são inseridos e devido ao alto-vácuo na câmara forma-se um feixe desses componentes. O feixe atinge o substrato e daí ocorre a deposição e formação do filme.

A diferença básica entre as duas técnicas é a origem dos precursores que serão inseridos na câmara. Enquanto no MBE estes são de origem sólida e na sua forma elementar, no CBE os precursores são vapores organo-metálicos e hidretos. Somente com a quebra desses compostos os materiais necessários ao crescimento aparecem na sua forma elementar. Como exemplo, um crescimento de filmes de GaAs sobre um substrato de GaAs pela técnica MBE seria feito usando fontes sólidas de Ga e As, as quais seriam aquecidas levando à evaporação

desses materiais. O vapor resultante da evaporação seria injetado na câmara de crescimento. Já na técnica CBE, o Ga e o As seriam resultado da quebra de moléculas de Trimetilgálio e Arsina, respectivamente. Dessa forma, na superfície do filme, além dos átomos de Ga e As, teremos átomos de Hidrogênio (H) e Carbono (C). A maior parte desses átomos (H e C) é evaporada e não afeta significativamente o processo de crescimento.

1.1.2 Processos Físicos

A dinâmica dos átomos na superfície de um filme crescido por MBE é governada basicamente por 3 processos cinéticos: deposição, difusão e dessorção.

- **Deposição:** processo onde o átomo incidente interage com a superfície realizando ligações com os átomos superficiais. Na deposição, o átomo pode realizar uma adsorção física, ou seja, sofre interações de natureza coulombiana através de forças de Van der Waals, permanecendo em poços de potencial rasos de onde pode facilmente sair. Ele pode ainda adsorver-se quimicamente, sendo efetivamente incorporado à superfície através de ligações covalentes, por exemplo.
- **Difusão:** processo onde o átomo se move sobre a superfície, obedecendo barreiras de potencial associadas a configuração da vizinhança do átomo.
- **Dessorção:** dependendo de condições como temperatura do substrato e da sobrepressão proporcionada pelo feixe químico ou molecular, o tempo de residência do átomo na superfície pode não ser suficiente para realizar ligações químicas, ou as ligações formadas podem ser quebradas facilmente (altas temperaturas), fazendo com que o átomo deixe a superfície do cristal.

Tanto a difusão como a dessorção são processos termicamente ativados. Dessa maneira, existe uma competição entre esses dois processos durante o crescimento. Contudo, a faixa de temperatura usada nas simulações está dentro do intervalo onde experimentalmente a taxa de crescimento é constante. Assim o processo de dessorção pode ser considerado desprezível comparado ao de difusão.

Embora os processos apresentados acima sejam para o sistema MBE, eles podem ser usados na descrição do crescimento por CBE desde que feitas as seguintes hipóteses:

- i.) quebra rápida dos precursores dos elementos que constituirão a camada de filme crescida.

Essa hipótese evita que novos mecanismos na dinâmica do crescimento sejam inseridos no modelo, tornando-o extremamente complicado. Isto pode ser obtido experimentalmente pelo controle da temperatura de crescimento;

ii.) influência desprezível dos resíduos das quebras dos precursores. Isso evitaria que colocássemos um novo elemento na superfície, o qual obedeceria também os processos de difusão, deposição e dessorção. Supõe-se portanto que os resíduos são totalmente dessorvidos da superfície ou, que caso haja uma certa quantidade deles na superfície, ela não causaria mudanças significativas na dinâmica do crescimento em termos de sua morfologia final.

Para a modelagem do sistema MBE, vários trabalhos de simulação [14-17,20-23] fazem apenas a análise da dinâmica para o átomo de Ga (para o caso do crescimento de GaAs) pois considera-se que o As se encontra saturado na superfície, tornando sua incorporação instantânea (modelo de uma espécie), como verificado experimentalmente.

Outros trabalhos [9, 10] envolvendo os 2 tipos de materiais levam em conta os processos de quebra de moléculas, diferentes probabilidades de deposição, difusão e dessorção, o que torna a modelagem e a análise dos resultados mais complicados. Embora esses modelos sejam mais realísticos, muitos dos aspectos do crescimento MBE podem ser obtidos com modelos de uma espécie [20].

Comentaremos a seguir sobre alguns parâmetros que podem caracterizar as configurações superficiais e influenciar o processo de difusão. O primeiro deles é a presença de degraus. Mesmo as superfícies mais planas encontradas experimentalmente apresentam terraços e consequentemente degraus. O esquema a seguir mostra isso.

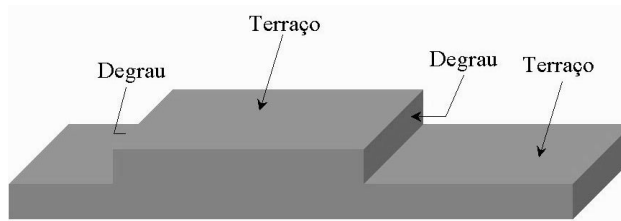


Figura 1.1: Esquema de uma configuração superficial. A figura mostra terraços (onde os átomos podem se difundir) e degraus monoatômicos (que devem ser transpostos para que um terraço diferente seja atingido).

A difusão é influenciada nas regiões próximas aos degraus. Devido a descontinuidade característica do degrau, as ligações químicas do átomo que está se difundindo e chega à borda do terraço são alteradas diferentemente do que quando a difusão se dá longe dela. Schwoebel e Shipsey propuseram uma barreira de potencial próxima ao degrau que representasse essa

alteração [1]. Essa barreira de canto é geralmente chamada barreira Schwoebel (figura 1.2) e a ela é associado o efeito Ehrlich-Schwoebel. Este nome vem da observação experimental de que átomos podem possuir diferentes probabilidades de incorporação no degrau, dependendo da direção em que eles o encontram, realizada por Ehrlich e Hudda [24], e da proposição teórica de uma barreira de potencial que descrevesse essa diferença de probabilidade feita por Schwoebel e Shipsey [1]. Esse efeito leva a uma incorporação preferencial dos átomos que estão se difundindo nos degraus dos terraços superiores podendo ser interpretado como uma probabilidade de reflexão do átomo pelo degrau. O movimento desses átomos gera uma corrente ascendente que tem uma característica puramente de não-equilíbrio pois ocorre no sentido inverso ao esperado para a relaxação superficial.

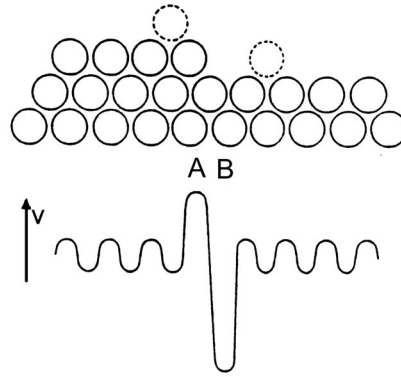


Figura 1.2: Barreira de canto de degrau encontrada pelo átomo que se difunde na superfície. A seta indica a direção de crescimento e os pontos A e B as posições de instabilidade e estabilidade para o átomo, respectivamente.

Com a presença dessa barreira surge uma probabilidade de reflexão no degrau para o átomo que vem se difundindo ao encontro deste. Com isso o átomo tende a permanecer sobre o terraço em que foi depositado. O efeito dessa barreira vem sendo estudado em diversos trabalhos [5-7,16,17,25-29] como sendo a causa da formação de estruturas superficiais de formato piramidal (*mounds*). Nesse caso o crescimento é denominado instável.

Um outro aspecto que pode influenciar a difusão é a presença de anisotropias superficiais. Um exemplo delas é aquela causada pela presença de dois tipos de degraus na superfície de compostos III-V. Esses degraus são perpendiculares entre si e são resultado da reconstrução superficial apresentada por esses compostos. Para o GaAs(001) são observados degraus do tipo A (terminados em Ga - alinhados perpendicularmente à direção $[110]$) e do tipo B (terminados em As - alinhados perpendicularmente à direção $[\bar{1}10]$) [14, 30]. Esses

degraus podem alterar tanto a energia de ligação nas direções $[110]$ e $[\bar{1}10]$ como gerar valores diferentes de barreiras de canto para essas direções. Um esquema desses degraus é apresentado na figura 1.3.

A anisotropia superficial também pode ser causada pela presença de átomos que não são componentes da estrutura cristalina do filme em crescimento. Exemplos são os dopantes (como o Berílio) e espécies presentes na fase vapor durante o crescimento como o Hidrogênio. Esses átomos podem associar-se aos degraus como os do tipo A e B e alterar suas características influenciando novamente a difusão [31].

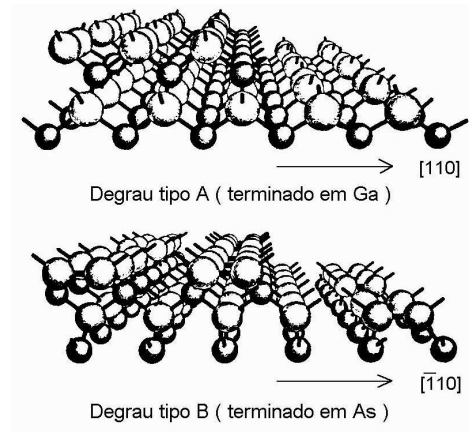


Figura 1.3: Degráus característicos para o GaAs(001).

1.2 Teoria

O estudo teórico do crescimento epitaxial é realizado essencialmente de duas formas.

1. Estudo de equações de crescimento

Nesse caso se faz uma abordagem analítica de equações que representam a evolução da superfície do filme crescido, numa escala onde toda propriedade é obtida de uma média sobre um pequeno volume contendo muitos átomos (*coarse-grained scale*) [32, 33]. O aspecto geral dessas equações é:

$$\frac{\partial h(\vec{x}, t)}{\partial t} = G(\vec{x}, h, t) + \eta(\vec{x}, t) \quad (1.1)$$

onde $h(\vec{x}, t)$ é a função que representa a morfologia do filme, $G(\vec{x}, h, t)$ é uma função geral que apresenta termos associados aos processos físicos mais importantes presentes num crescimento. Um exemplo é $G(\vec{x}, h, t) = -\kappa \nabla^4 h(\vec{x}, t)$ [4, 34] que seria o termo linear associado à difusão superficial dos átomos para um sistema onde ocorre a conservação do número de partículas (ausência de dessorção) e onde existe a dependência da curvatura da superfície no processo de difusão. Finalmente, a função $\eta(\vec{x}, t)$ representa o ruído associado aos processos de difusão e deposição.

2. Simulação computacional

A evolução do crescimento do filme numa escala atômica pode ser simulada computacionalmente [12, 18, 35]. Simulações são úteis no estudo de fenômenos muito complexos, que dificilmente seriam realizados através de uma abordagem puramente teórica, e permitem acessar parâmetros que o experimento não alcançaria. Basicamente dois métodos são usados para realizar a simulação de crescimento epitaxial: Dinâmica Molecular e Monte Carlo. Em dinâmica molecular a evolução de um sistema de N partículas mutuamente interagentes é calculada pela integração numérica de equações de movimento. Com esse método o crescimento pode ser analisado apenas em pequenas escalas de tempo ($\approx 10ns$) e comprimento (≈ 10 -100 distâncias atômicas) devido a grande demanda computacional solicitada nos cálculos. Para um estudo do crescimento em grandes escalas de tempo e comprimento (1-1000s e 10-1000 distâncias atômicas, respectivamente) o método Monte Carlo é usado. Nesse método o processo de crescimento é tratado como um processo estocástico onde se usam regras probabilísticas que são baseadas em modelos de crescimento.

Nesse trabalho pretendemos realizar uma comparação qualitativa de resultados obtidos de simulação com resultados experimentais. Essa comparação só seria possível se utilizássemos um método de simulação que permitisse alcançar escalas de tempo e de comprimento mais próximas às fornecidas pelo experimento. Devido a isso optamos pelo método Monte Carlo o qual permite estudos da evolução da morfologia, da cinética do crescimento e também de eventuais propriedades de escala que um dado sistema possa demonstrar.

1.3 Objetivos do trabalho

Este trabalho visa estudar a interação dos processos cinéticos (difusão e deposição) com as características da superfície (presença de degraus e anisotropia espacial) com o objetivo de entender a formação e evolução de estruturas presentes na superfície de um cristal em crescimento. Em particular, desejamos estudar a influência de substratos rugosos na formação e evolução de estruturas superficiais para fazermos uma comparação com resultados experimentais reportados na literatura [25, 36, 37]. Para isso foi necessário implementar e testar um programa que permitisse simular o crescimento epitaxial por método Monte Carlo. Uma vez testado o programa, ele foi aplicado no estudo de situações experimentais envolvendo anisotropia espacial e superfícies iniciais (substratos) rugosas.

A tese está dividida da seguinte maneira. O capítulo 2 apresenta uma descrição do método Monte Carlo, do modelo utilizado, suas características e limitações e da metodologia adotada para a análise dos resultados obtidos pela simulação. Os resultados do trabalho estão descritos no capítulo 3. As seções 3.1 e 3.2 mostram resultados que foram obtidos para testar o programa através da comparação com resultados encontrados na literatura. As demais seções descrevem aplicações do programa em vários casos de interesse prático e teórico. Finalmente o capítulo 4 é destinado às conclusões do trabalho.

Capítulo 2

Modelo

2.1 Método Monte Carlo

O método Monte Carlo consiste num método de simulação computacional baseado na utilização de números aleatórios [38]. O nome Monte Carlo é uma alusão à cidade de Monte Carlo, no principado de Mônaco, famosa pelo seus cassinos e jogos de azar. A geração de números aleatórios é uma parte importante deste método. Contudo, não é possível, em termos computacionais, obter um gerador de números verdadeiramente aleatórios. Usa-se então geradores de números pseudo-aleatórios. O termo pseudo é devido ao fato da inicialização do processo de geração ser realizada através de um valor determinado, uma semente.

Podemos dividir o método Monte Carlo em dois tipos [35]:

1. Monte Carlo Termodinâmico

É usado para calcular valores médios de quantidades físicas de interesse para um sistema em equilíbrio. Nesse caso o processo de geração de configurações, necessária para o cálculo dos valores médios, em geral não corresponde à seqüência da dinâmica do sistema. Nesse tipo de Monte Carlo não há tempo real. Geralmente o “tempo” é medido através de passos de Monte Carlo, ou seja, através da contagem do número de configurações tentativas geradas. Um algoritmo largamente usado nesse tipo de Monte Carlo é o de Metropolis [39]. Esse algoritmo, que freqüentemente é confundido com o método Monte Carlo em si, é uma das mais utilizadas aplicações do método Monte Carlo e é descrito a seguir.

Sendo um sistema físico representado pelas coordenadas $\vec{q}_i$ do espaço de fase e uma Hamiltoniana $H(\vec{q}_i)$ que descreve a energia interna desse sistema com a configuração $\vec{q}_i$, o algoritmo proporciona uma pequena alteração aleatória em $\vec{q}_i$ gerando

$$\vec{q}_i' = \vec{q}_i + \Delta\vec{q}_i \quad (2.1)$$

Definindo

$$\Delta E = H(\vec{q}_i') - H(\vec{q}_i) \quad (2.2)$$

teremos que a transição $\vec{q}_i \rightarrow \vec{q}_i'$ é sempre aceita quando $\Delta E \leq 0$ porém é aceita com probabilidade $\exp[-\Delta E/k_B T]$ se $\Delta E > 0$, onde T é a temperatura e k_B a constante de Boltzmann. Com a transição aceita, a configuração $\vec{q}_i'$ torna-se a nova configuração na seqüência do processo. Caso contrário uma nova alteração é feita e novamente testada. Isso é realizado até que uma das configurações geradas seja aceita.

2. Monte Carlo Cinético

Esse tipo é usado para reproduzir processos de não equilíbrio ou de relaxação. Nesse método as mudanças das configurações correspondem à evolução dinâmica do sistema. Com isso é possível definir um tempo real. Esse tempo se baseia em tempos característicos do sistema; por exemplo, o fluxo constante de partículas poderia ser uma medida da evolução para um sistema de crescimento. Com esse tempo pode-se calcular a evolução temporal das quantidades físicas de interesse. Vários algoritmos foram implementados para esse método [35] permitindo a otimização computacional das simulações.

Nesse trabalho foi usado o método Monte Carlo Cinético de forma que substituímos o processo de alteração e teste de configurações por uma matriz que contém a informação de todos os eventos possíveis a partir da qual obtém-se uma lista dos eventos com maior taxa de ocorrência. Dentro da lista escolhe-se um evento aleatoriamente e realiza-se esse evento, modificando o sistema. A cada evento realizado uma atualização na lista é feita. Esse procedimento só é possível pois sabemos *a priori* quais as probabilidades (taxas) de ocorrência de cada evento, como veremos adiante.

No método Monte Carlo os detalhes microscópicos das interações entre as partículas são simplificados fazendo assim com que o método seja útil para a simulação da complexa dinâmica de um grande número de partículas.

2.2 Modelo de crescimento

Nesse trabalho utilizamos o modelo *Solid-on-Solid* (SOS) [40]. O modelo considera o substrato como uma rede cúbica simples. Apesar da maioria dos sistemas estudados não possuir este tipo de estrutura, essa aproximação tem sido instrutiva na revelação de muitos aspectos dinâmicos do crescimento de cristais através de estudos com o método Monte Carlo. Os aspectos da rede blenda de zinco podem ser incluídos implicitamente em parâmetros do modelo. O modelo SOS atribui aos termos das energias potenciais da Hamiltoniana do sistema contribuições no plano (ligação com os vizinhos laterais) e da superfície, de modo que a presença de vacâncias e de átomos que não possuem vizinhos do plano inferior não é permitida. Condições periódicas de contorno são aplicadas na matriz que representa a rede cristalina. Considera-se também que os átomos que compõem o cristal são apenas de um tipo (modelo de uma espécie).

A deposição é simulada utilizando um fluxo F constante de átomos sobre o substrato. As deposições ocorrem nos momentos estabelecidos pela taxa de crescimento em posições aleatoriamente escolhidas.

Ao contrário da deposição, a difusão de um átomo depende da configuração local em que ele se encontra. A taxa de difusão de cada átomo da superfície é descrita por uma expressão tipo Arrhenius [9, 10, 15, 17, 41]

$$k_{DIF} = k_0 \exp[-E/k_B T]. \quad (2.3)$$

O pré-fator da exponencial é a frequência de vibração dos átomos da superfície. Essa frequência é obtida assumindo que os átomos da superfície possuem a mesma frequência de vibração e se comportem como osciladores harmônicos bidimensionais. Portanto uma aproximação razoável para k_0 em altas temperaturas pode ser obtida aplicando-se o teorema de equipartição de energia:

$$k_0 = \frac{2k_B T}{h}. \quad (2.4)$$

Nas expressões acima, T é a temperatura de crescimento, E é a energia de ativação para a difusão, h é a constante de Planck e k_B a constante de Boltzmann. Embora o crescimento seja um processo fora do equilíbrio, frequentemente faz-se a suposição que um equilíbrio local existe, permitindo assim definir quantidades termodinâmicas como a temperatura e considerar a taxa de difusão como uma expressão tipo Arrhenius. Supõe-se

também que o movimento das partículas é independente do das outras partículas e ocorre instantaneamente.

A energia de ativação para a difusão é modelada usando os seguintes termos [14, 17, 22]:

$$E = E_S + n_x E_{LIG}^x + n_y E_{LIG}^y + (m_i - m_f) \Theta(m_i - m_f) E_B \quad (2.5)$$

O termo E_S refere-se a interação entre o átomo depositado e os vizinhos no plano imediatamente abaixo. E_{LIG}^x e E_{LIG}^y são os termos associados aos primeiros vizinhos no plano em que se encontra o átomo nas direções perpendiculares x e y respectivamente.

Os valores de E_S , E_{LIG}^x e E_{LIG}^y são valores efetivos decorrentes de uma média sobre os processos rápidos da vibração atômica superficial que não são incluídos explicitamente no modelo. Além disso eles incorporam a aproximação de que a rede cristalina é considerada cúbica. O número de vizinhos nas direções x e y são n_x e n_y ($n_x, n_y = 0, 1, 2$) respectivamente. Para o caso isotrópico $E_{LIG}^x = E_{LIG}^y = E_{LIG}$ e o segundo e terceiro termos se reduzem a $n E_{LIG}$ ($n = n_x + n_y$, $n = 0, 1, 2, 3$ ou 4).

O termo com E_B representa o efeito da barreira de canto [17]. O valor de $m_i(m_f)$ corresponde ao número total de segundos vizinhos nos planos acima e abaixo daquele onde se encontra o átomo antes (depois) da difusão. A função degrau Θ permite a existência desse efeito somente quando $m_i > m_f$. Este termo representa uma dificuldade (menor probabilidade) do átomo chegar até a borda do terraço. Ao chegar à borda, através de difusão ou deposição, o átomo não encontra nenhuma dificuldade para se difundir para o terraço inferior. Essa idéia é baseada em resultados teóricos [42] que sugerem a existência de uma “região proibida” para a difusão próxima aos degraus.

No modelo aqui utilizado a taxa de difusão independe da diferença de alturas entre os vizinhos e não há nenhuma exigência de que a difusão seja feita para aumentar o número de ligações do átomo que está se difundindo. Além disso a difusão vertical é permitida para qualquer diferença de alturas entre o sítio anterior e posterior à difusão e pode ocorrer nos dois sentidos.

A figura 2.1 mostra algumas possíveis configurações da superfície e alguns exemplos de caminhos de difusão com as respectivas energias de ativação.

A descrição do programa de simulação, o qual engloba o método Monte Carlo e o modelo acima descritos, é feita no apêndice A.

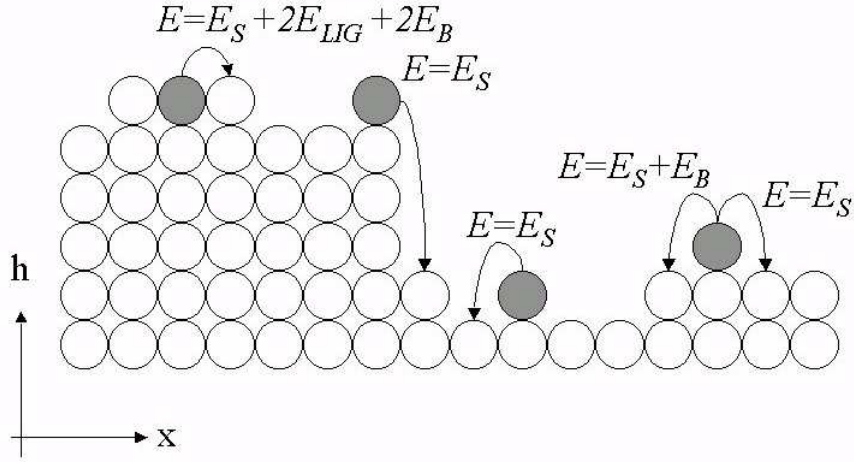


Figura 2.1: Exemplos de uma configuração superficial onde as possíveis direções de difusão e as energias de ativação associadas são indicadas. h e x são as direções paralela e perpendicular ao crescimento, respectivamente.

2.3 Metodologia

A evolução da superfície do filme crescido foi analisada usando as seguintes grandezas:

- **Rugosidade (w):** essa quantidade mede o desvio quadrático médio das alturas dos vários sítios em relação a altura média. Ela é dada pela seguinte expressão

$$w^2(t) = \frac{1}{L^2} \sum_{i,j=1}^L (h_{i,j}(t) - \bar{h}(t))^2 \quad (2.6)$$

onde L^2 é o número total de sítios da superfície, $h_{i,j}$ é a altura do sítio (i, j) e $\bar{h}$ é a altura média da superfície. Essa grandeza possibilita medir a qualidade da interface e também estudar comportamentos de escala através da análise dos expoentes críticos do crescimento (Apêndice B).

- **Densidade de degraus (D):** a densidade de degraus na superfície é descrita pela expressão

$$D(\phi, t) = \frac{1}{L^2} \sum_{i,j} \{ [1 - \delta(h_{i,j}(t), h_{i+1,j}(t))] \cos \phi + [1 - \delta(h_{i,j}(t), h_{i,j+1}(t))] \sin \phi \} \quad (2.7)$$

onde $\delta(i, j)$ é o delta de Kronecker e ϕ é o ângulo da direção no plano em que se deseja calcular D . Essa grandeza foi usada no estudo qualitativo do comportamento do RHEED (*Reflection High Energy Electron Diffraction*, ou difração de elétrons de alta energia por reflexão [43]) por Shitara *et al.* e mostrou-se adequada para simular os resultados obtidos por essa técnica [15].

- **Função correlação (C):** juntamente com a rugosidade, a função correlação dá informações sobre propriedades de escala do crescimento. A função correlação é obtida através da seguinte expressão

$$C^2(l, t) = \left\langle \frac{1}{N(l)} \sum_{(i,j)=1}^{N(l)} (h_{i,j}(t) - h_0(t))^2 \right\rangle \quad (2.8)$$

onde l é a distância entre os sítios (i, j) e 0 e $N(l)$ é o número de sítios a uma distância l do sítio 0. A média $\langle \rangle$ é feita sobre aproximadamente 1000 sítios de origem 0.

- **Morfologia:** uma análise importante da evolução do crescimento é feita usando as morfologias das superfícies tomadas em vários momentos do crescimento.

Um outro cálculo feito durante as simulações foi o do comprimento médio de difusão l_D . No nosso cálculo, l_D consiste na distância média em que os átomos analisados necessitariam percorrer do momento em que são depositados até o momento em que as quatro ligações laterais possíveis sejam completadas. Quando um novo átomo é depositado sobre um átomo analisado para a contagem de l_D esta é terminada. Efetuamos o cálculo de l_D quantificando o deslocamento nas direções x e y a partir do ponto de deposição do átomo i analisado (figura 2.2). Calculamos $l_{D(x,y)}^i$ para vários i_s obtendo assim uma distribuição de comprimentos de difusão. A partir dessa distribuição obtém-se $l_{Dx(y)}$ dos átomos pela largura (desvio padrão) da função gaussiana ajustada à distribuição.

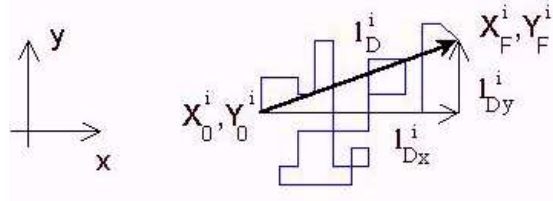


Figura 2.2: Esquema de caminho de difusão (linha azul) partindo do ponto 0 e chegando ao ponto F para o átomo i . O comprimento de difusão ao longo das direções no plano (x e y) e o comprimento total de difusão são apresentados.

As simulações foram realizadas em redes quadradas $L \times L$ com $L = 100$. As justificativas dessa escolha são dadas no apêndice A. Usamos uma faixa de temperatura de crescimento de $400^\circ C$ a $630^\circ C$. As taxas de crescimento foram 0.01, 0.1 e 1 ML/s (monocamadas por

segundo). Para o caso de ausência de anisotropia espacial os parâmetros do modelo usados foram $E_S = 1.54eV$ e $E_{LIG} = 0.23eV$. Esses parâmetros foram determinados por Shitara *et al.* [15] em simulações da oscilação da intensidade RHEED durante o crescimento epitaxial em substratos desorientados de GaAs(001). Para o caso anisotrópico usamos $E_{LIG}^x = 0.42eV$ e $E_{LIG}^y = 0.042eV$, valores sugeridos por Orme *et al.* [25] em um estudo sobre a formação de estruturas superficiais anisotrópicas em filmes homoepitaxiais de GaAs(001) crescidos por MBE. Esses valores obedecem a relação

$$E_{LIG} = \frac{1}{2}(E_{LIG}^x + E_{LIG}^y). \quad (2.9)$$

Essa relação juntamente com

$$\Delta E_{LIG} = \frac{E_{LIG}^x}{E_{LIG}^y} \quad (2.10)$$

foram usadas por Shitara *et al.* para a parametrização dos valores das energias de ligação no estudo de crescimento epitaxial em substratos vicinais de GaAs(001) [14]. No nosso caso usamos $\Delta E_{LIG} = 10$. Quando a instabilidade ($E_B \neq 0$) foi considerada o valor de $E_B = 0.175eV$ foi usado [17].

Capítulo 3

Resultados

3.1 Transições entre modos de crescimento

A combinação de condições de crescimento como temperatura e fluxo pode levar a diferentes relações entre o comprimento médio de difusão dos átomos na superfície (l_D) e a largura média dos terraços (l_T). Dependendo dessas relações o crescimento poderá se encontrar em 2 modos distintos.

- modo tridimensional(3D), onde

$$l_D \ll l_T. \quad (3.1)$$

No modo 3D, o átomo adsorvido encontra um sítio de estabilidade em cima do terraço antes de chegar ao degrau. Isso faz com que a nucleação de camadas subsequentes seja feita sobre camadas incompletas, o que geralmente torna a superfície do filme mais rugosa.

- modo bidimensional(2D): ocorre quando a combinação de temperatura e fluxo leva a

$$l_D \sim l_T \quad \text{ou} \quad l_D \gg l_T. \quad (3.2)$$

Neste caso, quando a formação de ilhas estáveis sobre o terraço é o processo dominante, o crescimento se encontra no regime 2D camada-a-camada onde basicamente uma camada é preenchida antes da formação da camada subsequente. No entanto, quando a propagação de degraus na superfície torna-se o processo dominante, o crescimento se encontra no regime 2D fluxo de degraus. Isso ocorre quando o processo de “captura”

do átomo pelo degrau é mais eficiente do que a formação de ilhas sobre o terraço. Um tratamento detalhado desse regime é feito por Schwoebel e Shipsey [1]. Essencialmente esse processo é mais facilmente identificado em crescimentos sobre substratos desorientados já que a densidade de degraus é maior (diminuição de l_T). Isso permite que esse fenômeno ocorra nas temperaturas usuais de crescimento.

A observação experimental do modo 2D tem sido realizada utilizando a técnica RHEED através das oscilações na intensidade do feixe de elétrons. Estas oscilações têm um período característico dado pelo tempo necessário para se completar uma monocamada de filme. Esse comportamento foi primeiramente observado para o crescimento de filmes finos por Neave *et al.* [44] no estudo do crescimento de GaAs sobre GaAs.

As oscilações estão associadas a uma evolução periódica da superfície. Tal evolução vai desde um alto grau de arrumação superficial - quando uma camada atômica está praticamente preenchida - até um grau de máxima desordem superficial permitida pela temperatura de crescimento. O ciclo se completa quando a superfície novamente volta ao estado de maior arrumação. Isso foi observado experimentalmente usando microscopia de varredura por tunelamento (STM - *Scanning Tunneling Microscopy*) como mostrado por Sudijono *et al.* [45]. Eles notaram que as oscilações da intensidade do padrão de RHEED eram associadas à variação da densidade de degraus da superfície. No entanto essas oscilações não ocorrem indefinidamente. Vários trabalhos verificaram um amortecimento das oscilações RHEED até o ponto onde não eram mais observadas. Nesse instante o sistema alcançaria um estado de equilíbrio dinâmico onde, apesar da morfologia estar em constante mudança, a densidade de degraus permaneceria praticamente constante [45].

A utilização da densidade de degraus para o estudo das oscilações RHEED foi feita inicialmente por Clarke e Vvedensky [20]. Eles usaram um modelo simples para descrever o crescimento e ao monitorá-lo com o cálculo da densidade de degraus observaram a transição do modo 3D para o 2D (fluxo de degraus) [15].

Neste trabalho, efetuando simulações com diferentes temperaturas de crescimento e mantendo-se fixos os parâmetros $E_S = 1.54eV$, $E_{LIG} = 0.23eV$, $E_B = 0$ e $F = 1ML/s$ pudemos verificar a transição do modo 3D para o 2D (camada-a-camada e fluxo de degraus). O resultado de nossas simulações é apresentado a seguir.

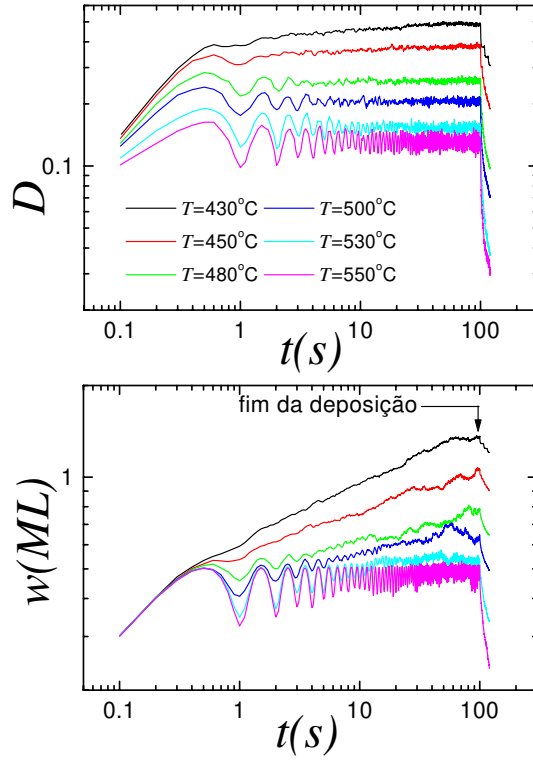


Figura 3.1: Transições entre os modos de crescimento para o caso nominal. Evolução temporal da função rugosidade e densidade de degraus (calculada ao longo da direção x) para várias temperaturas de crescimentos realizados sobre um substrato nominal (plano). Note que o valor da função densidade de degraus é menor para temperaturas mais altas, o que indica uma superfície mais plana. O mesmo acontece para a função rugosidade. A queda nos valores das funções mostradas no gráfico acima é devido ao processo de tratamento térmico efetuado após o término da deposição do filme. Esse processo visa simular parte do efeito do resfriamento do filme após o crescimento, o qual pode alterar a morfologia final observada experimentalmente. A curva contínua é obtida a partir da ligação entre pontos consecutivos obtidos da simulação. O número de 10 pontos por monocamada depositada foi usado em todas as curvas apresentadas nesse trabalho.

Para o caso do crescimento sobre um substrato nominal (plano), a transição pode ser vista quando oscilações, tanto em w quanto em D (figura 3.1), começam a ocorrer a partir de uma certa temperatura. Dessa forma, o crescimento realizado a uma temperatura de 550°C se encontra no regime 2D camada-a-camada caracterizado pelas oscilações bem visíveis. Nota-se ainda que os mínimos da função rugosidade e densidade para 550°C são justamente nos intervalos de tempos associados a uma monocamada de filme depositada. Já para a temperatura de 430°C nenhuma oscilação é observada, caracterizando o modo 3D.

Os resultados apresentados na figura 3.1 reproduzem qualitativamente aqueles obtidos por Pal e Landau [18] para o crescimento sobre substratos planos. Neste trabalho, eles também verificaram oscilações bem definidas para w e D porém para valores de parâmetros

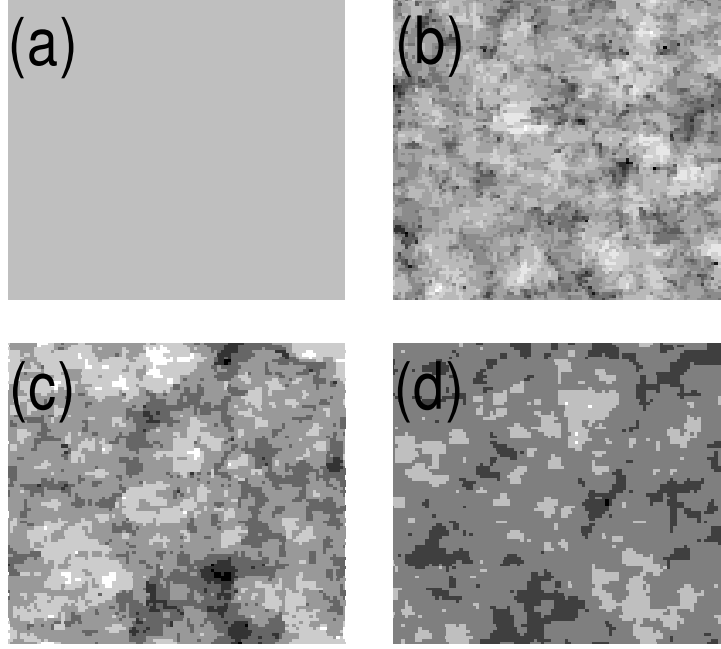


Figura 3.2: Morfologias para o caso da simulação de crescimento sobre um substrato nominal. O substrato (plano) é mostrado em (a). As morfologias após 100 MLs depositadas usando $T = 430^{\circ}C$ (b), $T = 480^{\circ}C$ (c) e $T = 530^{\circ}C$ (d) também são apresentadas. Cada cor nos gráficos representa uma monocamada atômica, onde cores mais claras indicam regiões mais altas e cores mais escuras regiões mais baixas. Essa é a convenção adotada em todas as imagens de morfologias obtidas por simulação nesse trabalho.

diferentes.

As morfologias típicas para os modos 2D (camada-a-camada) e 3D são mostradas na figura 3.2. Vemos em (b) uma superfície bem rugosa, a qual caracteriza o modo 3D e, em (d) a presença de grandes terraços distribuídos na superfície caracterizando o modo 2D (camada-a-camada).

Para o crescimento sobre um substrato vicinal vemos a transição do modo 3D para o 2D (fluxo de degraus) na figura 3.3. Essa figura mostra a evolução temporal de D calculada paralelamente aos degraus iniciais. Para as temperaturas mais baixas, oscilações de D não são observadas (modo 3D). Quando a simulação é feita com temperaturas mais altas oscilações começam a aparecer. No entanto, essas oscilações são rapidamente amortecidas. Para $T = 550^{\circ}C$ por exemplo, vemos também que o período das oscilações já não mais corresponde ao tempo necessário para se completar uma monocamada. No caso de $T = 600^{\circ}C$ as oscilações desaparecem e o valor de D é praticamente constante, o que indica que o sistema atingiu o modo de crescimento 2D (fluxo de degraus).

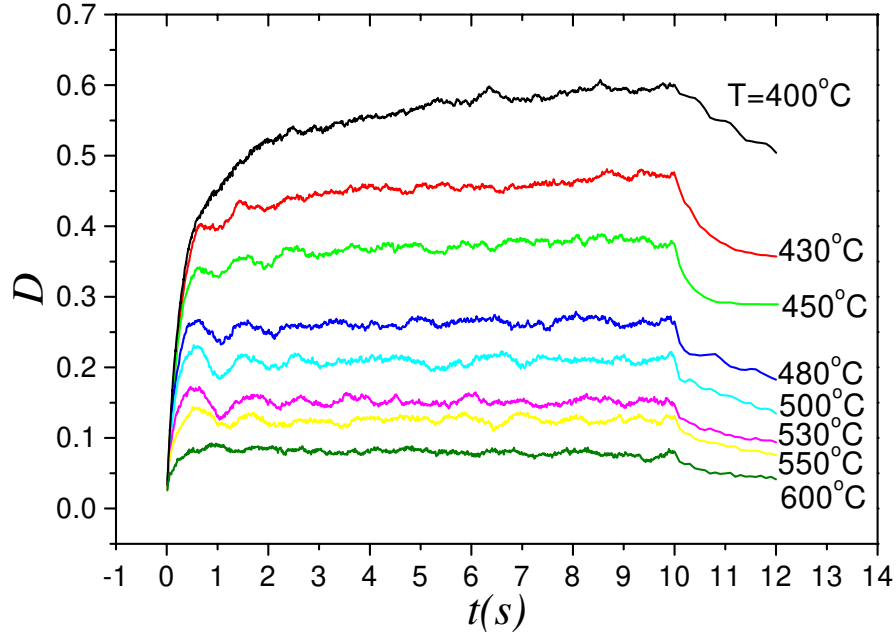


Figura 3.3: Evolução temporal da função densidade de degraus calculada paralelamente aos degraus iniciais do substrato vicinal. Resultados semelhantes foram obtidos para a densidade de degraus calculada perpendicularmente aos degraus.

As morfologias para o caso vicinal são apresentadas na figura 3.4. Podemos notar que para $T = 400^{\circ}C$ os degraus iniciais não são observados. O mesmo não acontece para $T = 600^{\circ}C$ onde o aspecto inicial da superfície é basicamente mantido porém os degraus são deslocados. Dessa característica originou-se o nome modo de crescimento 2D fluxo de degraus.

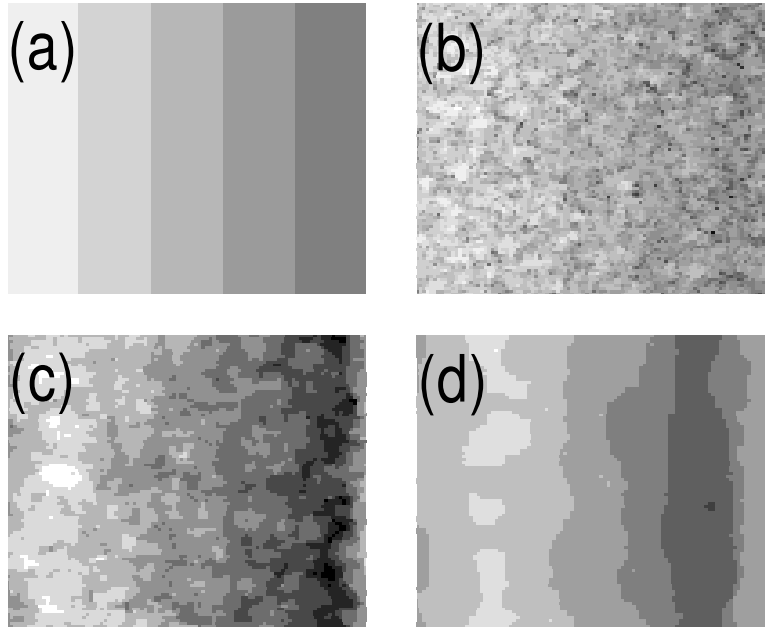


Figura 3.4: Morfologias para o caso da simulação de crescimento sobre um substrato vicinal. O substrato é mostrado em (a). As morfologias após 10 MLs depositadas usando $T = 400^{\circ}C$ (b), $T = 500^{\circ}C$ (c) e $T = 600^{\circ}C$ (d) também são apresentadas.

Esses resultados concordam qualitativamente com os obtidos por Clarke e Vvedensky [20] durante a comparação das intensidades de RHEED e a densidade de degraus na superfície.

Assim para os parâmetros considerados, pudemos identificar os modos de crescimento predominantes em cada temperatura utilizada.

3.2 Influência da barreira Schwoebel

Durante o crescimento epitaxial, estruturas superficiais podem se formar e evoluir com certas características. Um exemplo são as estruturas tridimensionais com formato piramidal geralmente chamadas *mounds* (morros). Usaremos aqui o termo em inglês encontrado na literatura.

Essas estruturas foram observadas em diversos sistemas como Ge/Ge [26], Fe/Mg [27], GaAs/GaAs [25, 29] e Fe/Fe [28]. Vários trabalhos teóricos [7, 17, 46] mostraram que a formação dessas estruturas é associada ao efeito Ehrlich-Schwoebel.

Uma das características da evolução dos *mounds* é o processo de coalescência, ou seja, da união de duas ou mais destas estruturas para a formação de uma única [17]. Mudanças na evolução temporal da rugosidade também são observadas quando o sistema apresenta o efeito Ehrlich-Schwoebel. Smilauer e Vvedensky [17] estudaram a evolução da rugosidade e da morfologia usando simulação Monte Carlo. Eles obtiveram um valor de $\beta \cong 0.33$ durante a evolução dos *mounds* para $E_B = 0.175eV$. A simulação do efeito Ehrlich-Schwoebel foi feita usando o termo envolvendo E_B mostrado na equação 2.5. É importante notar aqui que, embora os *mounds* não apresentem propriamente uma característica de auto-afinidade (crescimento instável), os expoentes α e β (Apêndice B) podem ser calculados com o objetivo de caracterizar a evolução dessas estruturas.

Visando testar o programa reproduzimos os aspectos gerais da formação e evolução dos *mounds*. Os resultados da simulação para a evolução da rugosidade do filme em função do tempo é mostrado na figura 3.5 para duas temperaturas. A presença da barreira leva ao aparecimento de dois valores do expoente β , além do fato da rugosidade ser maior comparada ao caso sem barreira. Nota-se também que, para $T = 530^\circ C$, no caso onde a barreira está presente, o regime de equilíbrio dinâmico não é alcançado como no caso de $E_B = 0$. Além disso, as oscilações da rugosidade não são vistas, de forma que o modo camada-a-camada dá lugar a um novo modo de crescimento.

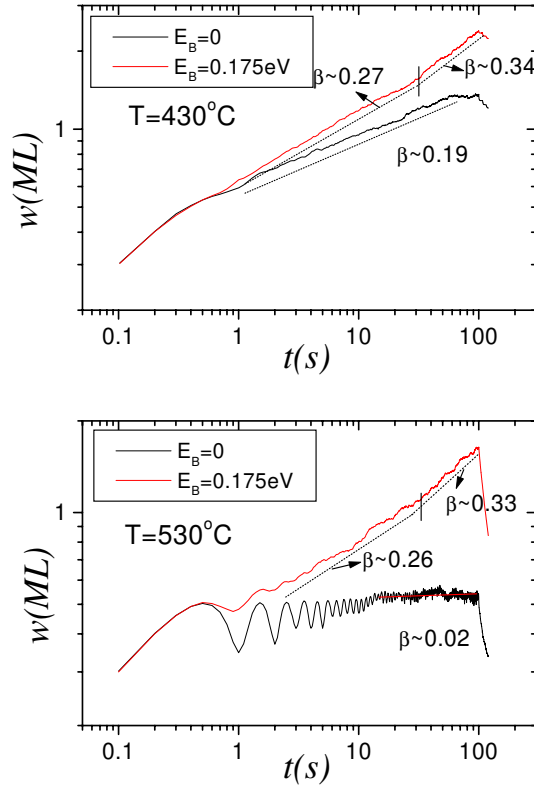


Figura 3.5: Evolução temporal da função rugosidade para crescimentos com e sem o efeito da barreira de canto.

Essas duas situações são associadas à formação de estruturas piramidais na superfície. Essas estruturas têm o seu período de formação - associado ao expoente $\beta \simeq 0.26$ - e o seu período de evolução - associado ao expoente $\beta \simeq 0.33$. A evolução dessas estruturas foi estudada por Vvedensky *et al.* analisando a evolução temporal das suas dimensões laterais e de suas inclinações [17]. A figura 3.6 mostra a comparação de morfologias dos casos com e sem barreira e a influência da temperatura no tamanho dos *mounds*.

As dimensões laterais dos *mounds* aumentam com o aumento da temperatura de crescimento. Nota-se também que a base dessas estruturas possui um formato circular. Isto se deve à barreira isotrópica imposta até o momento no modelo adotado. Para tempos mais longos é possível notar a coalescência entre *mounds* vizinhos. Esse é um dos processos que regem a evolução dessas estruturas [17]. A coalescência é indicada pela setas na figura 3.7.

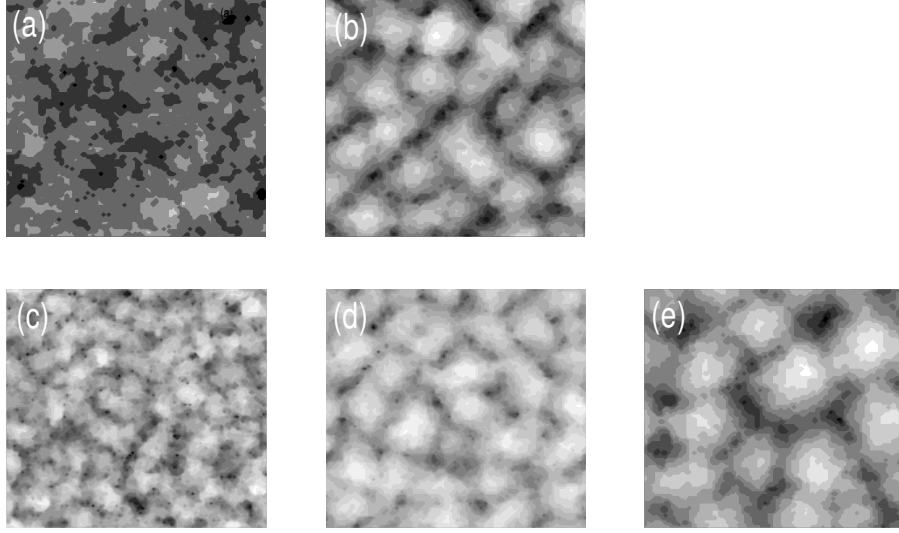


Figura 3.6: Morfologias finais do crescimento de 100MLs obtidas com as simulações. A morfologia para o caso sem barreira de canto é apresentada em (a) para comparação com o caso onde ela está presente (b). As simulações das morfologias de (a) e de (b) foram feitas usando $T = 480^\circ C$ e $F = 1 ML/s$. A influência da temperatura nas morfologias com a presença da barreira de canto é mostrada em (c) ($T = 430^\circ C$), (d) ($T = 480^\circ C$) e (e) ($T = 530^\circ C$).

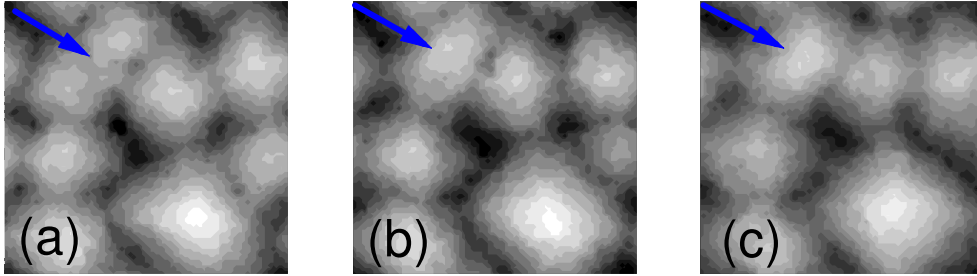


Figura 3.7: Evolução das estruturas piramidais para tempos longos. A seta indica o processo de coalescência entre dois *mounds* menores formando um maior. O número de monocamadas depositadas foi 250 (a), 440 (b) e 565 (c). As condições de crescimento foram $T = 530^\circ C$, $F = 1 ML/s$ e $E_{LIG}^x = E_{LIG}^y = 0.23 eV$, $E_B = 0.175 eV$ e $E_S = 1.54 eV$.

3.3 Estudo do comprimento de difusão

Informações sobre o comprimento de difusão superficial podem ser acessadas facilmente com a simulação, que torna possível mapear o deslocamento de um átomo. Em situações reais isso é mais difícil embora seja possível acompanhar o “movimento” atômico usando STM em câmaras de ultra-alto vácuo [47].

Realizamos o cálculo do comprimento de difusão para estudar como este é influenciado pela temperatura, taxa de crescimento e pela presença da barreira de canto.

Primeiramente mostraremos alguns exemplos de distribuição do comprimento de difusão referentes aos casos de variação da taxa e da temperatura de crescimento. Essas distribuições são mostradas na figura 3.8.

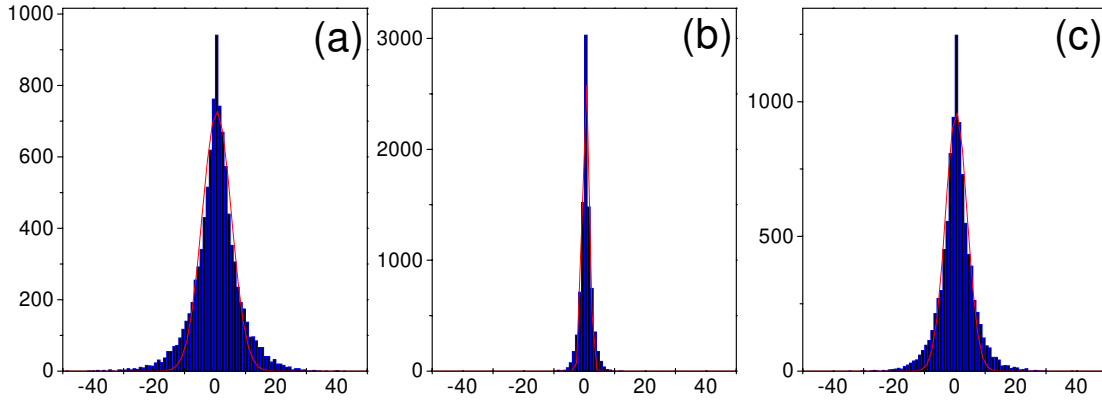


Figura 3.8: Distribuições do comprimento de difusão l_D^x em algumas situações de simulação. A curva vermelha é a gaussiana ajustada à distribuição. Com essas gaussianas e as relacionadas com o deslocamento na direção y obtivemos os valores de l_D mostrados a seguir.

- (a) $T = 430^\circ\text{C}$, $F = 0.01\text{ML/s}$ e $l_D = 4.8$ unidades de sítios de rede (*u.s.r.*);
- (b) $T = 430^\circ\text{C}$, $F = 1\text{ML/s}$ e $l_D = 1.2$ *u.s.r.*;
- (c) $T = 530^\circ\text{C}$, $F = 1\text{ML/s}$ e $l_D = 3.6$ *u.s.r.* .

Com esses exemplos nota-se a simetria das distribuições mostrando a ausência de uma direção preferencial na difusão dos átomos. Um segundo aspecto é o aumento do comprimento médio de difusão com a diminuição da taxa de crescimento para uma mesma temperatura. Esse aumento ocorre justamente por haver um tempo maior de relaxação superficial para os átomos no caso de taxas de crescimento menores. Com um tempo maior de relaxação o processo de interação do átomo que é depositado com os outros átomos na superfície é prolongado, acarretando o aumento em l_D . O último aspecto é o aumento de l_D com o

aumento da temperatura. A ativação da difusão depende da temperatura; assim, o aumento da temperatura de crescimento proporciona maiores taxas de difusão e consequentemente maiores valores de l_D .

Embora os valores de l_D se mostrem pequenos ($l_D \approx 1.2 - 4.8$ u.s.r.) eles caracterizam o comportamento geral da difusão dos átomos ao longo do crescimento. Isso não indica que o átomo apenas se mova em torno de poucos sítios vizinhos. A figura 3.9 mostra o caminho percorrido por alguns átomos durante o crescimento. Vemos que há átomos que chegam a percorrer grandes áreas até completarem as 4 ligações possíveis.

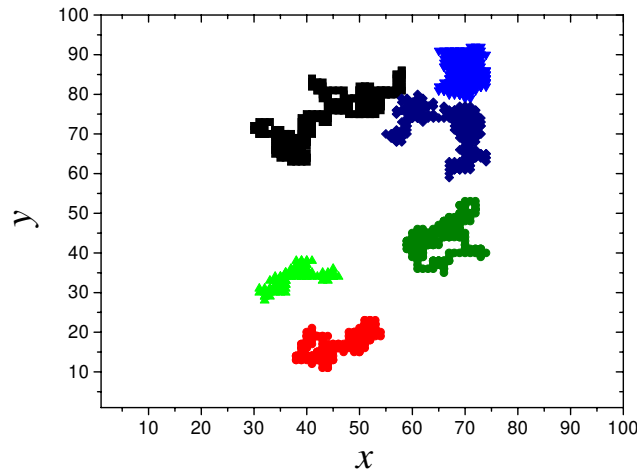


Figura 3.9: Mapeamento do movimento de 6 átomos. Cada cor representa um átomo analisado.

Uma outra aplicação do cálculo do comprimento de difusão foi na comparação de simulações com a presença da barreira de canto. A figura 3.10 mostra a variação de l_D em função da temperatura de crescimento para os casos com e sem barreira.

Podemos observar que para a temperatura mais baixa ($430^\circ C$) o comprimento médio de difusão é pouco alterado pela presença da barreira. Nesse caso o comprimento de difusão é limitado principalmente pela baixa ativação da difusão. Na situação de temperaturas mais altas a diminuição de l_D (comparado com o caso de $E_B = 0$) é verificada quando a barreira é incluída no processo de crescimento. Essa diminuição decorre da formação das estruturas piramidais. Devido a forma dessas estruturas, a área efetiva de difusão é alterada de maneira que o átomo que está se difundindo encontra um sítio de maior estabilidade mais rapidamente, diminuindo o comprimento de difusão.

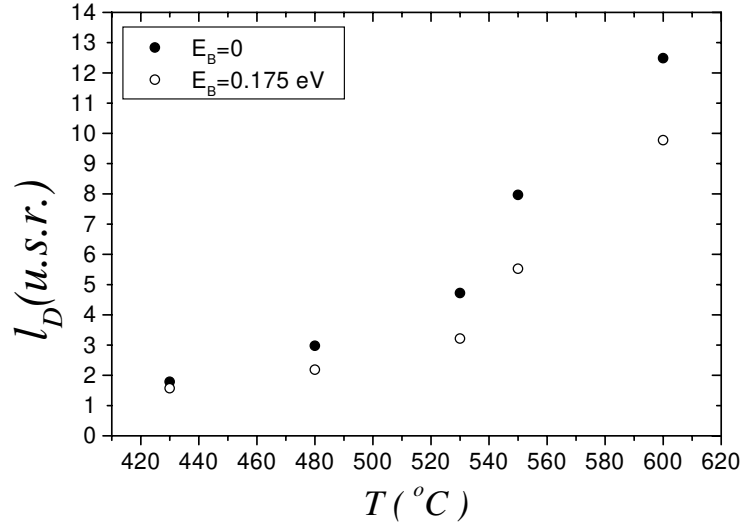


Figura 3.10: Gráfico do comprimento médio de difusão em função da temperatura. Os valores dos comprimentos foram obtidos a partir de histogramas de 10000 átomos analisados durante a simulação de crescimentos de 100MLs ($E_S = 1.54\text{eV}$, $E_{LIG} = 0.23\text{eV}$ e $F = 1\text{ML/s}$).

Uma outra análise de l_D foi feita através da sua evolução temporal, também comparando os casos com e sem barreira de canto. A figura 3.11 mostra essa evolução.

Para o caso sem barreira vemos que l_D sofre variações mas se mantém em torno de um valor constante ($l_D \simeq 3.7$ sítios de rede) ao longo do crescimento. Já para o caso onde a barreira está presente existe uma diminuição de l_D até aproximadamente 80 segundos; a partir desse instante o valor de l_D se estabiliza. A queda do valor de l_D ao longo do tempo envolve a formação dos *mounds*, indicando novamente a influência dessas estruturas no comprimento médio de difusão dos átomos que se difundem na superfície do filme. A estabilização de l_D sugere a estabilização da inclinação dos *mounds* e consequentemente da largura média dos terraços.

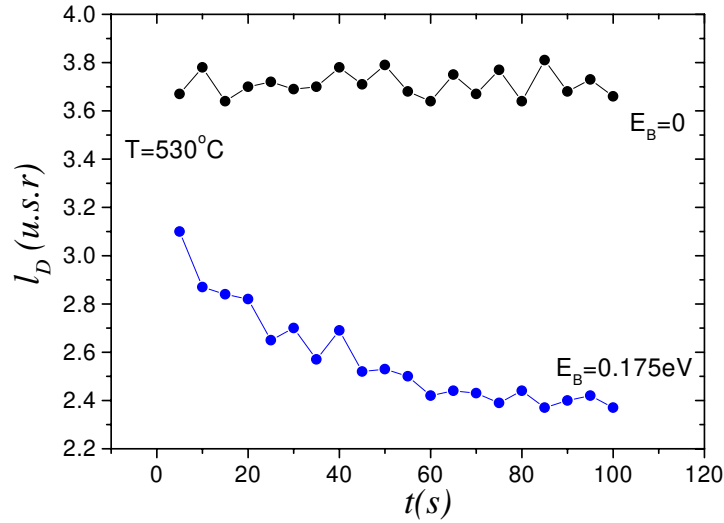


Figura 3.11: Evolução do comprimento médio de difusão ao longo do crescimento para os casos com e sem barreira de canto. A taxa de crescimento usada foi de $1ML/s$. Cada ponto consiste numa média de aproximadamente 8500 átomos para o caso de $E_B = 0$ e 6700 átomos para o caso de $E_B = 0.175eV$.

Como mencionado anteriormente, a corrente ascendente que surge da presença do efeito Ehrlich-Schwoebel leva à nucleação do átomo que está se difundindo sobre os terraços. Esse fato pode ser observado mapeando o movimento de um átomo na região de um *mound* como mostra a figura a seguir.

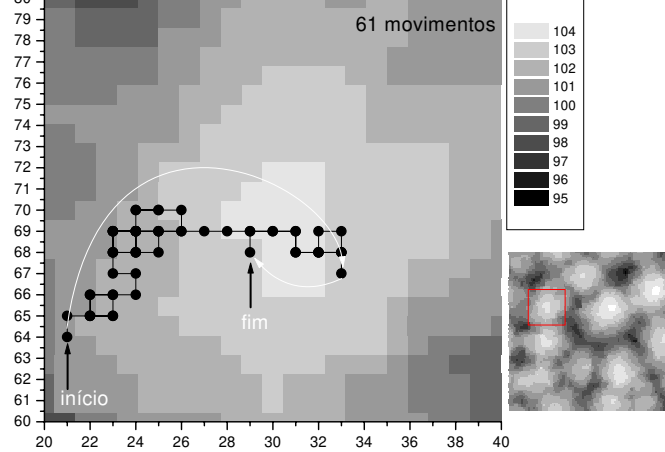


Figura 3.12: Visualização da corrente ascendente através do mapeamento do caminho realizado pelo átomo. No total o átomo realizou 61 movimentos desde o ponto inicial (deposição) até o final. A figura ao lado mostra a região da matriz onde o átomo realizou o movimento.

3.4 Influência da anisotropia superficial

Vários resultados experimentais envolvendo o crescimento de compostos semicondutores III-V sugerem a presença de uma anisotropia espacial nesses sistemas. Orme *et al.* [25] observaram a formação de *mounds* com um aspecto alongado durante a homoepitaxia de GaAs usando MBE. Com o mesmo modelo usado aqui, com $E_{LIG}^x \neq E_{LIG}^y$, eles reproduziram a forma das estruturas encontradas. Ainda com o mesmo material Van Nostrand *et al.* [29] também verificaram experimentalmente a presença de *mounds* alongados na direção $[\bar{1}10]$ em GaAs crescido por MBE. No entanto a anisotropia na forma é reduzida quando o crescimento é realizado na presença de H devido a utilização de fontes gasosas (AsH_3) como precursor do grupo V. Para o InP, Cotta *et al.* [48] também observaram estruturas similares durante a homoepitaxia usando CBE.

Analizamos aqui três situações de anisotropia superficial. A primeira situação é aquela onde a anisotropia se encontra nas energias de ativação ($E_{LIG}^x \neq E_{LIG}^y$). A segunda é quando a primeira se associa ao efeito da barreira de canto. A terceira situação analisada é a de uma barreira de canto anisotrópica.

As diferenças entre as três situações são representadas na figura a seguir pelas morfologias resultantes de simulações com os parâmetros adequados. As simulações foram feitas com três temperaturas diferentes em todas as situações. Para comparação são também apresentadas as morfologias do caso isotrópico mais simples ($E_{LIG}^x = E_{LIG}^y$ e $E_B = 0$).

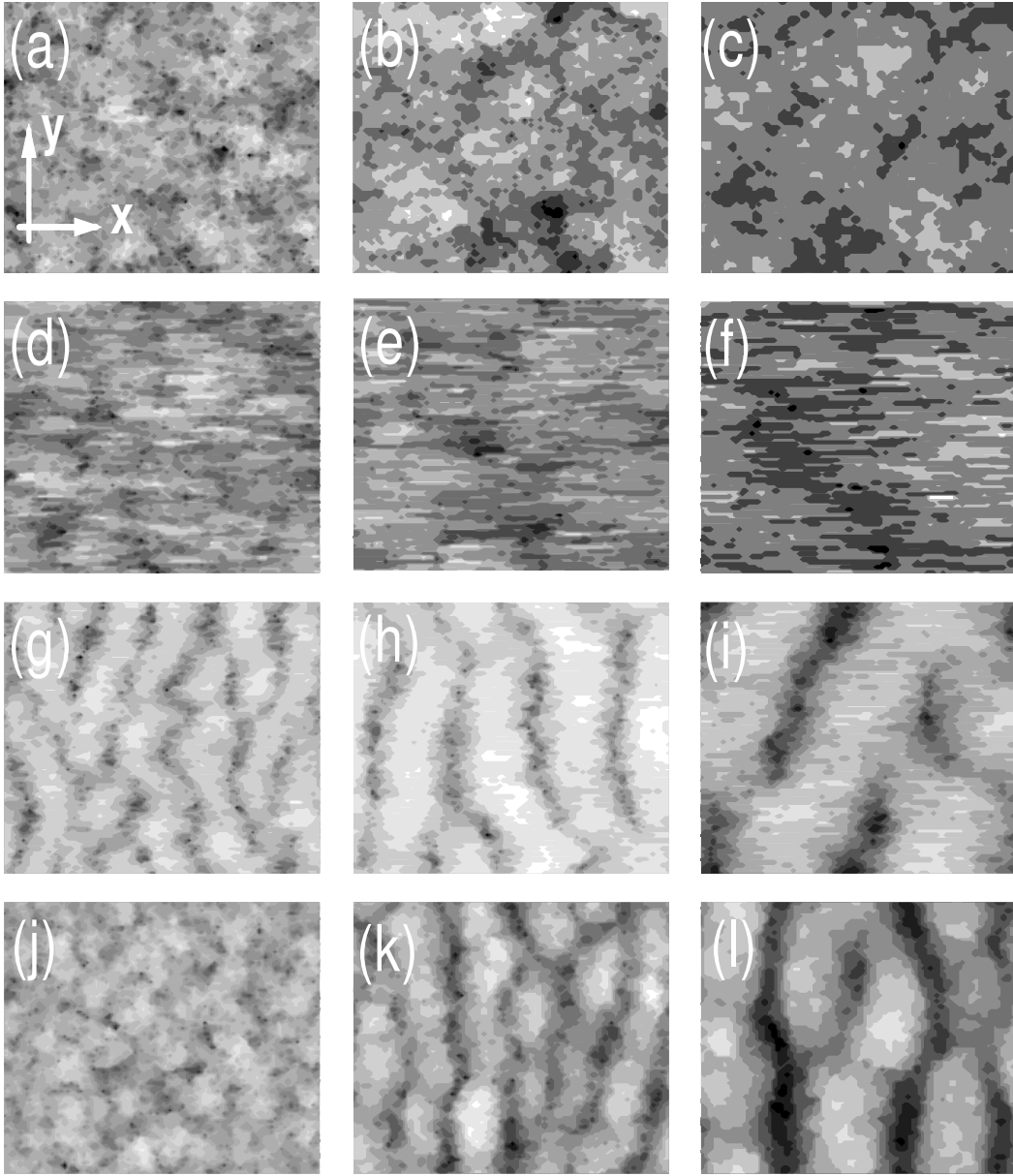


Figura 3.13: Morfologias mostrando a influência da anisotropia. Condições de simulação: $T = 430^{\circ}C$ (a,d,g,j), $T = 480^{\circ}C$ (b,e,h,k) e $T = 530^{\circ}C$ (c,f,i,l). Em todas as simulações foi usada uma taxa de crescimento de $1ML/s$ e as morfologias são resultado de $100MLs$ depositadas.

$E_B = 0$, $E_{LIG}^x = E_{LIG}^y = 0.23eV$ e $E_S = 1.54eV$ (a,b,c);

$E_B = 0$, $E_{LIG}^x = 0.42eV$, $E_{LIG}^y = 0.042eV$ e $E_S = 1.54eV$ (d,e,f);

$E_B = 0.175eV$, $E_{LIG}^x = 0.42eV$, $E_{LIG}^y = 0.042eV$ e $E_S = 1.54eV$ (g,h,i);

$E_B^x = 0.175eV$, $E_B^y = 0$, $E_{LIG}^x = E_{LIG}^y = 0.23eV$ e $E_S = 1.54eV$ (j,k,l).

Na primeira situação (d,e,f) verifica-se a presença de estruturas alongadas na direção onde a energia de ligação é maior (direção x). A presença dessas estruturas pode ser compreendida analisando a figura a seguir.

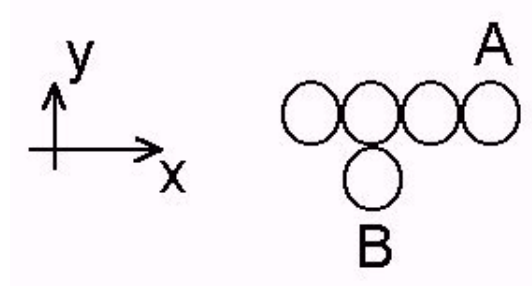


Figura 3.14: Exemplo de configuração superficial de átomos no mesmo plano indicando a presença de um átomo A, ligado a um vizinho na direção x , e um átomo B, ligado a um vizinho na direção y .

Para o caso de $E_{LIG}^x > E_{LIG}^y$ as taxas de difusão dos átomos A e B obedecem a relação $k_{DIF}^A < k_{DIF}^B$. Dessa forma podemos associar à posição de A uma maior estabilidade comparada com a posição de B. Isso faz com que as estruturas alinhadas na direção x sejam mais estáveis, tornando-se predominantes na superfície. O aumento da temperatura leva a um valor menor da rugosidade da morfologia porém as estruturas alongadas ainda permanecem na superfície.

A segunda situação (g,h,i), onde a barreira de canto é incluída no crescimento, apresenta morfologias diferentes. Vemos ainda as estruturas alongadas na direção x , caracterizando a microrugosidade (microestruturas), mas vê-se também estruturas alongadas na direção y , caracterizando a macrorugosidade (macroestruturas). Como os *mounds*, essas estruturas aumentam suas dimensões laterais com o aumento da temperatura. O aparecimento das estruturas alongadas na direção y se deve portanto à presença de E_B . Uma explicação para a formação das estruturas alongadas na direção y pode obtida analisando a deposição de átomos sobre as estruturas predominantes vistas nas figuras 3.13 (d), (e) ou (f), como mostrado na figura 3.15.

Na presença da barreira de canto o átomo marcado somente sentirá o efeito da barreira ao se difundir ao longo das direções (3) e (4) (obviamente quando o átomo estiver próximo ao degrau). A difusão pelas direções (1) e (2) não é modificada pela barreira. Podemos notar que, embora a barreira Schwoebel imposta seja isotrópica, o seu efeito parece ser mais significativo ao longo da direção x . Assim teremos implicitamente a presença de uma barreira

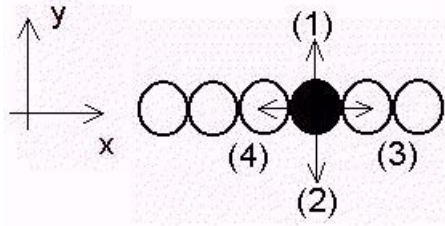


Figura 3.15: Possível configuração superficial para uma situação de anisotropia. As 4 direções mostradas são as permitidas para a difusão do átomo marcado. Esse átomo possui $n = 0$ estando sobre uma estrutura alongada composta de 6 átomos no plano inferior.

Schwoebel anisotrópica devida à presença das microestruturas. Essa barreira leva a uma maior restrição do movimento ao longo da direção x gerando portanto as macroestruturas.

Embora as estruturas vistas na segunda situação de anisotropia sejam previstas teoricamente, ainda não foram observadas experimentalmente. No entanto *mounds* alongados foram observados experimentalmente e obtidos teoricamente [25]. Duas diferenças importantes existem entre esses resultados e as estruturas mostradas na figura 3.13 (g), (h) e (i). A primeira delas é a ausência da microrugosidade no caso experimental. A outra é o alinhamento dos *mounds* ao longo da direção de maior energia de ligação na simulação. Essas duas diferenças são observadas nos resultados de simulação usando um modelo que inclui a pré-difusão caracterizada por um parâmetro R [25], além da anisotropia e barreira de canto. O parâmetro R refere-se ao tamanho de um quadrado de lado $2R + 1$ onde é feita a busca por um sítio de maior estabilidade no momento da deposição [17]. Esse processo de busca (pré-difusão) melhora a morfologia da superfície pois diminui o número de átomos com $n = 0$ na superfície e é usado para simular resultados obtidos com metais [49]. A pré-difusão é um processo (conhecido como *downward funneling* [49]) onde parte da energia do átomo que está sendo depositado é transformada em movimento, com a consequente relaxação para um sítio mais estável nas proximidades do local de deposição. No caso de semicondutores, a pré-difusão é usada juntamente com o termo envolvendo E_B para reproduzir quantitativamente as oscilações RHEED para o crescimento de GaAs sobre substratos vicinais de GaAs(001) [16]. A pré-difusão funciona como um mecanismo de compensação em sistemas onde o efeito Ehrlich-Schwoebel é significativo. A inclusão do processo de busca no modelo usado no nosso trabalho também reproduziu a formação de *mounds* alongados sem a microrugosidade e alinhados na direção de maior energia de ligação.

Para a terceira situação de anisotropia, onde a anisotropia superficial é representada somente por uma barreira de canto anisotrópica, vemos também *mounds* alongados. Nesse caso o termo envolvendo E_B na expressão 2.5 é separado em dois, cada um representando uma direção (x e y). Da mesma forma, os valores de m_i e m_f são calculados apenas nas respectivas direções. As morfologias encontradas são mostradas na figura 3.13 (j), (k) e (l). O alinhamento ao longo da direção y se dá pela presença de uma barreira de canto na direção x , o que leva a uma restrição da difusão nessa direção.

Com a evolução da função rugosidade também notamos as diferenças encontradas nas três situações de anisotropia. O gráfico seguinte mostra essa evolução para $T = 530^\circ\text{C}$.

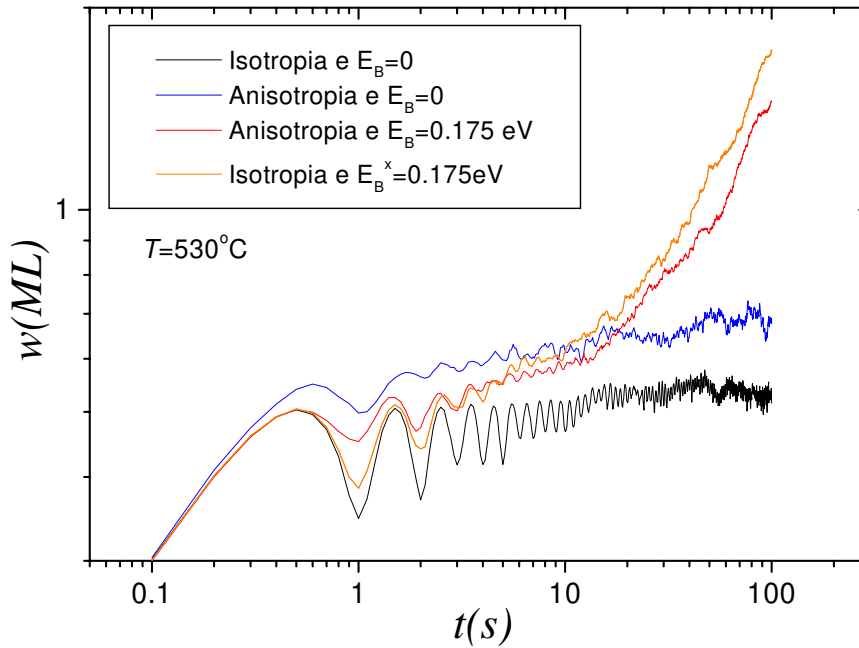


Figura 3.16: Influência da anisotropia superficial na evolução temporal da função rugosidade. Curvas referentes às simulações da figura 3.13 (c), (f), (i) e (l).

A anisotropia na taxa de difusão com $E_B = 0$ leva a uma alteração no modo 2D camada-a-camada pois vemos que as oscilações da função rugosidade são amortecidas mais rapidamente. Quando a barreira de canto está presente vemos um aumento significativo da rugosidade. Nesse caso, quando as oscilações são totalmente amortecidas inicia-se a formação da macro-rugosidade. Um comportamento semelhante ocorre quando uma barreira anisotrópica é imposta explicitamente.

Para a escolha da forma de anisotropia que poderia melhor descrever um dado sistema é necessário realizar a comparação com resultados experimentais (morfologia e evolução da

rugosidade). Vimos que, embora a formação de *mounds* alongados seja mais facilmente descrita apenas por uma barreira de canto anisotrópica, a descrição dos resultados experimentais (tanto da formação quanto do alinhamento das estruturas) pode ser obtida ao se incluir o processo de pré-difusão e valores diferentes para as energias de ligação, com uma barreira de canto isotrópica.

Esses resultados mostram que, embora estejamos usando um modelo de rede cúbica simples, vários aspectos de uma rede blenda de zinco (como é caso do GaAs e do InP) podem ser reproduzidos com o uso das barreiras de energia com diferentes valores para cada direção.

3.5 Superfícies iniciais rugosas

Essa última seção tem como objetivo apresentar um estudo sobre a influência de superfícies iniciais rugosas na evolução da morfologia de filmes epitaxiais. Nesse estudo é feita uma comparação qualitativa com resultados experimentais que apresentam superfícies iniciais rugosas.

Vários trabalhos experimentais apresentam resultados que mostram a influência de superfícies rugosas no crescimento [25, 29, 31, 36, 37]. Em particular, o crescimento de filmes homoepitaxiais de GaAs sobre superfícies que apresentam uma alta rugosidade inicial (com a presença de vales) foi observado tanto por MBE [25] como por CBE [36]. Os vales (do inglês *pits*) - com uma alta densidade de degraus - aparecem no substrato após o processo de desoxidação e são distribuídos sobre uma superfície plana. Para filmes crescidos por CBE [36] observou-se a formação de estruturas tipo-*mound* quando uma grande quantidade de vales está presente na superfície inicial; as estruturas são associadas a um estágio do processo de planarização dos vales. Após a planarização total da superfície, as estruturas tipo-*mound* não são mais observadas e dão lugar a grandes terraços monoatômicos. Os resultados de simulação que serão apresentados aqui reproduziram qualitativamente bem os aspectos gerais desses resultados experimentais [50].

Morfologias típicas mostrando os vales presentes na superfície inicial de crescimento são apresentadas na figura 3.17. Esses vales de profundidade entre 50 e 100 Å se distribuem uniformemente sobre uma superfície essencialmente plana ($w \sim 3.5\text{Å}$). A densidade de vales na superfície foi estimada como sendo de $\sim 140\mu\text{m}^{-2}$ para substratos desorientados e de $\sim 30\mu\text{m}^{-2}$ para substratos nominais [36], nos experimentos realizados.

A evolução da morfologia do filme homoepitaxial de GaAs crescido por CBE é apresentada na figura 3.18. Nessa figura vemos em (a) os vales na superfície inicial, em (b) as estruturas tipo-*mound* que aparecem durante o crescimento e em (c) os grandes terraços que se formam com a planarização da superfície inicial rugosa.

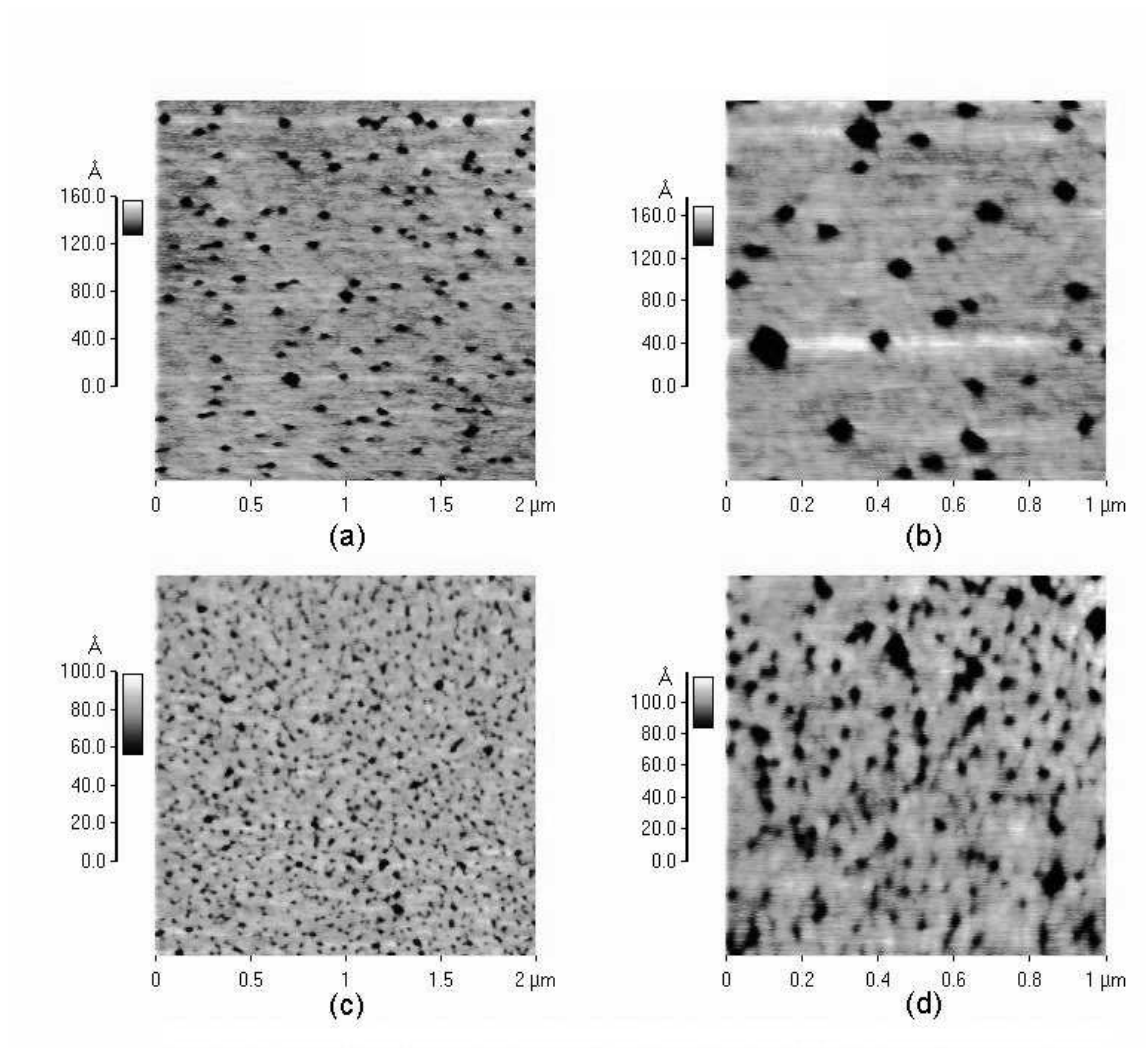


Figura 3.17: Imagens de microscopia de força atômica apresentando os vales encontrados após o processo de desoxidação do substrato de GaAs, onde os substratos foram mantidos a uma temperatura de 590°C por 5 min sob um fluxo de As_2 . (a) e (b) são imagens de um substrato nominal e (c) e (d) de um substrato desorientado 2° na direção $\langle 110 \rangle$.

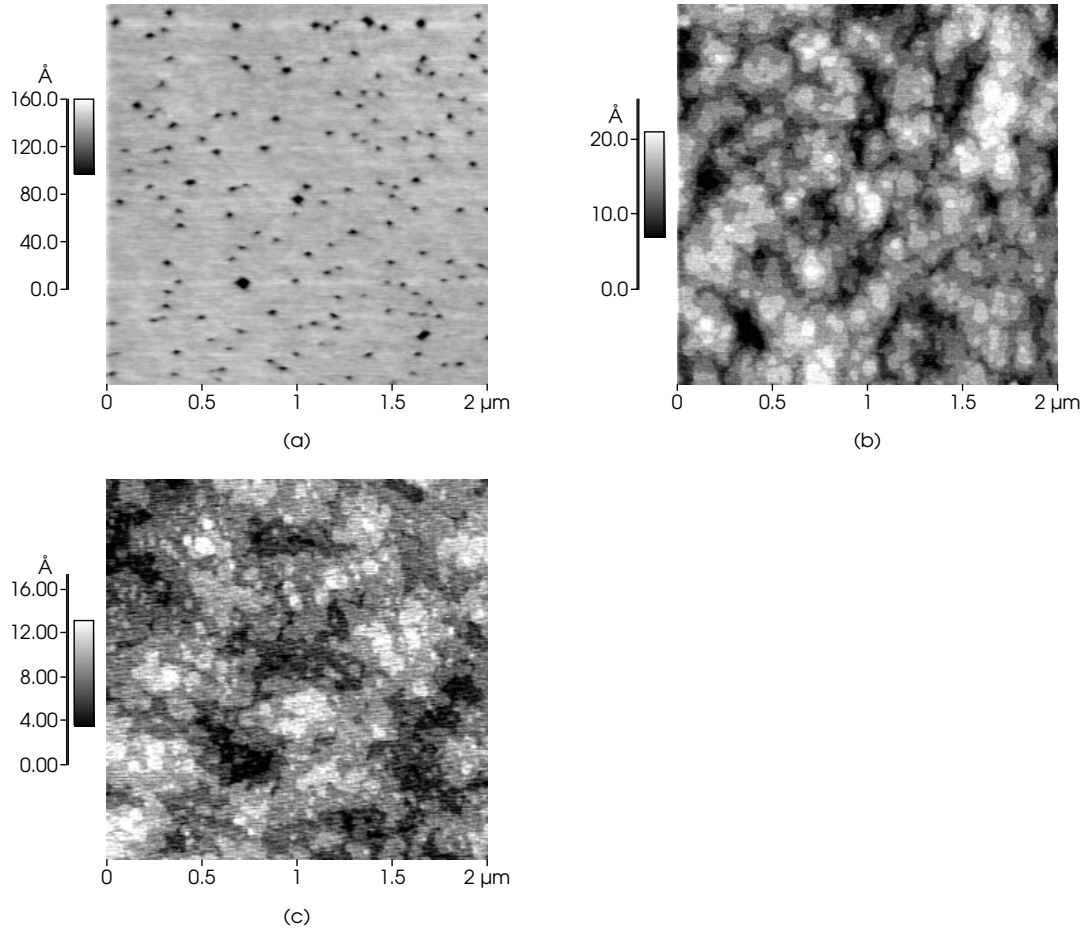


Figura 3.18: Imagens de microscopia de força atômica da evolução da superfície dos filmes de GaAs crescidos por CBE [36]. As condições de crescimento foram $T = 530^{\circ}C$ e $F = 0.4nm/s$. Em (a) apresenta-se o substrato nominal similar ao utilizado no crescimento, em (b) a morfologia do filme de espessura de 3000Å e em (c) de 15000Å.

O comportamento da função rugosidade para essa evolução superficial é apresentada na figura 3.19. Vemos um aumento inicial no valor da rugosidade, que é consequência do aumento lateral dos vales, e depois uma diminuição de w o que corresponde ao processo de planarização. Valores ligeiramente maiores de w são observados para taxas de crescimento mais altas.

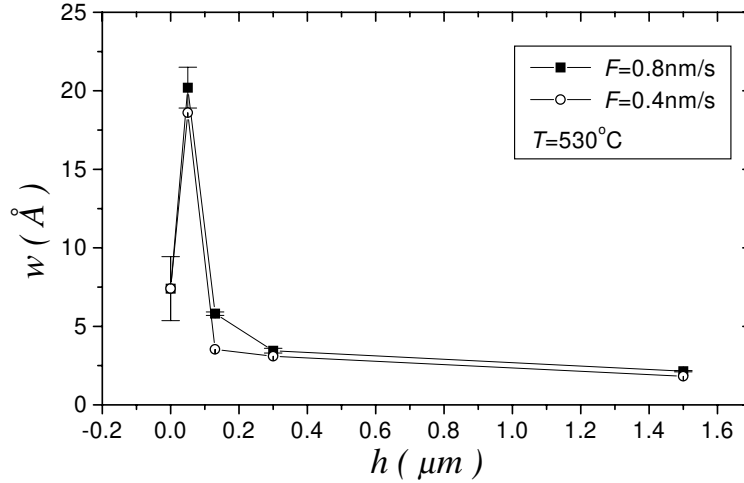


Figura 3.19: Evolução temporal da função rugosidade para o crescimento dos filmes homoepitaxiais de GaAs crescidos por CBE [36] sobre substratos nominais.

Para simularmos essa evolução inicialmente construímos as superfícies iniciais que seriam usadas nas simulações. Essas superfícies, que ainda não haviam sido consideradas em trabalhos de simulação, foram baseadas em dados experimentais obtidos da figura 3.17 como profundidade, densidade e distribuição dos vales na superfície. Exemplos de algumas superfícies iniciais rugosas usadas nas simulações são mostradas na figura 3.20. Em particular as morfologias da figura 3.20 (a) e (c) apresentam 4 vales de 20MLs de profundidade distribuídos simetricamente sobre uma superfície plana. No entanto substratos reais apresentam uma distribuição de tamanhos e profundidades dos vales. Assim, morfologias como a da figura 3.20 (b) foram propostas para simular esse aspecto. O número de vales na superfície foi obtido a partir da estimativa experimental da razão entre a área ocupada pelos vales sobre a área do substrato. A figura 3.20 (d) mostra uma seção transversal da figura 3.20 (b) da qual é possível ver os degraus que compõem os vales.

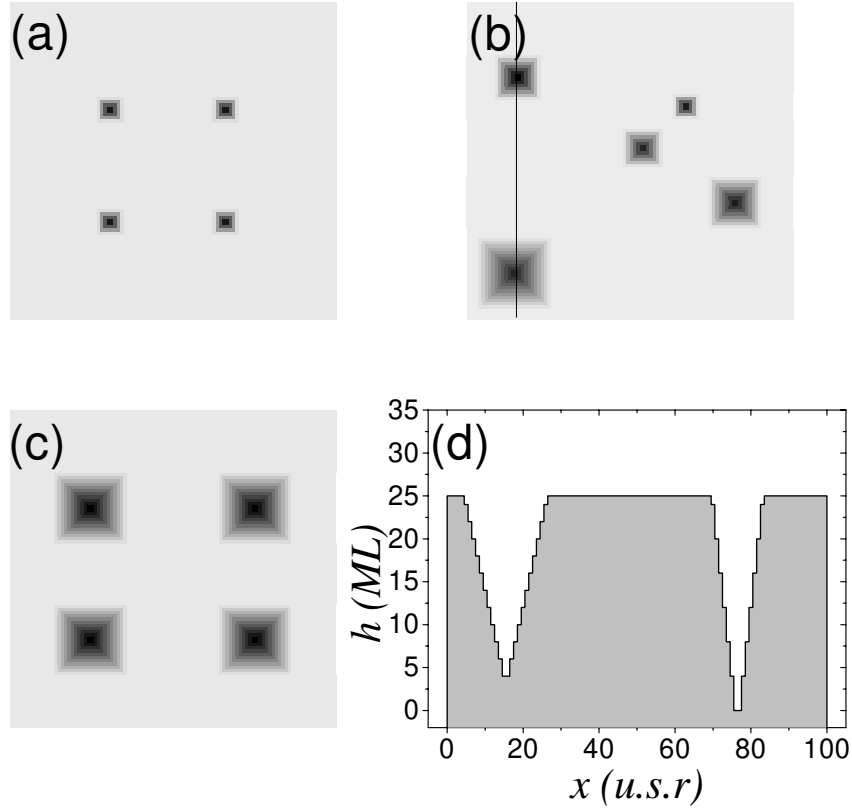


Figura 3.20: Superfícies iniciais usadas nas simulações (a,b,c). Os valores de rugosidade são aproximadamente de 1.3 para (a) , 3.1 para (b) e 3.7 MLs para (c). A imagem da seção transversal da superfície em (b) representada pela linha preta é mostrada em (d).

A partir das morfologias apresentadas na figura 3.20 realizamos simulações do crescimento de 100 MLs para 3 temperaturas. A figura 3.21 (a) mostra a evolução da função rugosidade para simulações sobre a superfície inicial da figura 3.20 (a) para 3 temperaturas, $F = 1ML/s$ e $E_B = 0$. A comparação com o caso de $E_B \neq 0$ é feita na figura 3.21 (b).

Para o caso onde $E_B = 0$ todas as curvas mostram uma queda do valor da rugosidade até atingir um valor praticamente constante. As linhas tracejadas indicam o momento aproximado onde esses valores são atingidos e onde os vales são totalmente planarizados. Para temperaturas mais altas a planarização é mais rápida e o valor final da rugosidade é menor. Esse comportamento é devido à maior ativação da difusão com o aumento da temperatura. Os mesmos aspectos qualitativos foram observados em outras configurações de vales. Esses resultados reproduzem qualitativamente o comportamento da rugosidade observado na homoeptaxia de filmes de GaAs por CBE [36]. A planarização de defeitos na superfície também foi observada num modelo unidimensional por Elkinani e Villain [6] quando o efeito Ehrlich-Schwoebel não foi considerado.

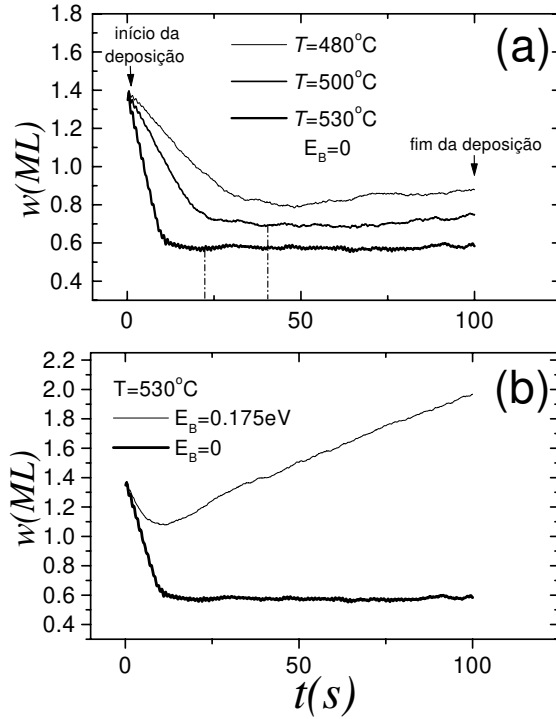


Figura 3.21: Evolução temporal da rugosidade para o caso de $E_B = 0$ para diferentes temperaturas de crescimento (a). A taxa de crescimento usada foi de $1\text{ML}/s$. A superfície inicial usada foi a da figura 3.20 (a). As linhas tracejadas indicam o momento aproximado onde a rugosidade atingiu um valor estável. As condições de crescimento para a simulação representada em (b) foram $T = 530^\circ\text{C}$, $F = 1\text{ML}/s$ com $E_B = 0.175\text{eV}$ ($R = 1$) e $E_B = 0$. Todas as curvas foram obtidas da média de 5 simulações independentes.

Quando a barreira de canto está presente o processo de planarização é interrompido. Isso pode ser notado na figura 3.21 (b). A função rugosidade atinge um valor mínimo e em seguida evolui aumentando seu valor. Esse comportamento reproduz qualitativamente o observado na evolução de filmes de InAs crescidos por MBE sobre superfícies que apresentam vales [37]. Krug e Rost [51] mostraram que os aspectos gerais da evolução da rugosidade podem ser descritos por uma teoria contínua linear embora termos não lineares sejam importantes para a descrição quantitativa dessa evolução.

Na figura 3.22 a comparação entre a simulação de um crescimento instável sobre uma superfície plana e uma superfície rugosa (figura 3.20 (a)) é feita. O mesmo comportamento mostrado na figura 3.21 (b) para o caso onde $E_B \neq 0$ é observado. O aumento da rugosidade é associado à formação e evolução das estruturas piramidais na superfície. O crescimento sobre a superfície plana apresenta o típico comportamento da formação e evolução dos *mounds*. Assim, o colapso das duas curvas indica que após um regime transitório o crescimento sobre uma superfície rugosa tende para o crescimento sobre uma superfície inicial plana. Esse

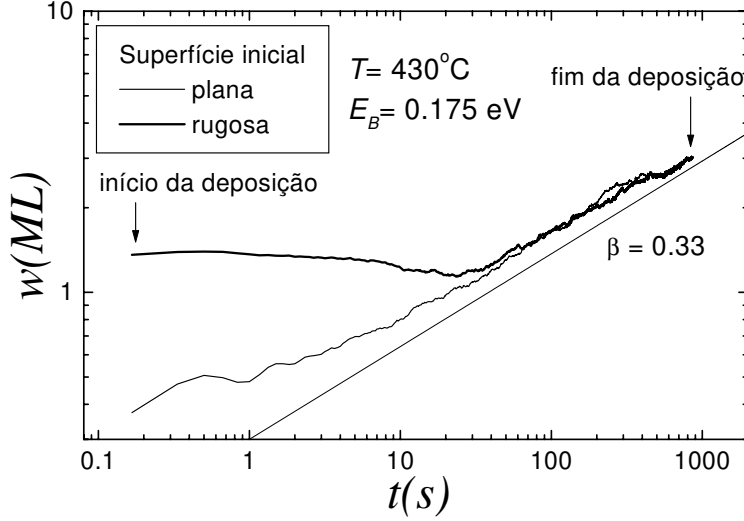


Figura 3.22: Evolução temporal da rugosidade para o caso de $E_B = 0.175\text{eV}$ e $R = 1$ (ver discussão sobre parâmetro na página 32) para diferentes substratos iniciais. O substrato rugoso usado é o mostrado da figura 3.20 (a). A taxa de crescimento usada foi de 1ML/s com a temperatura de 430°C . A curva $w \sim t^\beta$ também é apresentada.

regime transitório termina quando os valores das rugosidades em ambas superfícies tornam-se similares e a evolução dos *mounds* domina o crescimento.

A evolução da morfologia para o caso de $E_B = 0$ é mostrada na figura 3.23. Nessa evolução vemos a planarização dos vales. Os vales menores desaparecem antes dos demais. Em particular, para 100MLs depositadas, não há mais vales na superfície. É importante notar que para a planarização total dos vales necessita-se de um número de monocamadas depositadas maior que a profundidade do vale mais profundo. Esse fato também é verificado experimentalmente [36].

Entre o início da deposição e a total planarização dos vales, novas estruturas se formam na superfície. O tamanho lateral dessas estruturas pode ser limitado pela presença dos vales durante o estágio inicial de crescimento. Quando os vales desaparecem a limitação não é mais imposta de forma que essas estruturas tendem às estruturas típicas do modo 2D camada-a-camada observadas no caso de altas temperaturas e/ou baixos fluxos em superfícies iniciais planas.

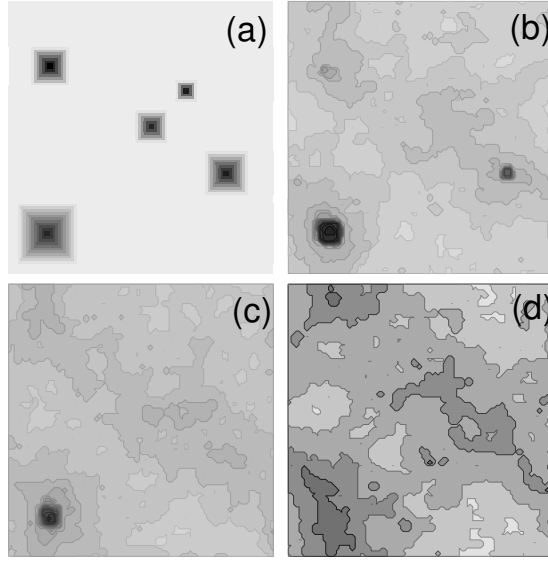


Figura 3.23: Evolução da morfologia para um crescimento estável sobre uma superfície inicial rugosa. As morfologias correspondem a 0 (a), 25 (b), 45 (c) e 100 MLs depositadas (d). As condições de crescimento foram $F = 0.1 ML/s$ e $T = 480^\circ C$.

O processo de limitação causado pela presença dos vales pode ser mais facilmente visto na figura 3.24 (a) quando a taxa de crescimento é aumentada para $1 ML/s$. Na figura 3.24 (a) a morfologia final após o crescimento de $100 MLs$ e um tratamento térmico (*annealing*) de $20s$ é mostrada para o caso de $E_B = 0$ sobre a superfície da figura 3.20 (b). Entre os vales, estruturas com poucas monocamadas de altura aparecem. Essas estruturas se assemelham às observadas tanto em filmes de GaAs crescidos por CBE [36] quanto em filmes de InAs crescidos por MBE [37]. Gyure *et al.* mostraram que a formação e evolução dessas estruturas são governadas pela instabilidade representada por $E_B \neq 0$ [37].

Nossas simulações, no entanto, mostram que a formação dessas estruturas é possível mesmo quando nenhuma instabilidade está presente ($E_B = 0$) se morfologias iniciais similares às encontradas experimentalmente forem usadas. Assim as estruturas tipo-*mound* que se formam são modeladas pela configuração dos vales na superfície para o caso estável ($E_B = 0$). Este aspecto, associado a queda da rugosidade observada experimentalmente, sugere uma barreira desprezível para a homoepitaxia de filmes de GaAs realizada por CBE.

Uma outra evidência desse fato é a diferença entre as morfologias das figuras 3.24 (a) e (b). A figura 3.24 (b) apresenta a morfologia final para as mesmas condições da figura 3.24 (a) mas com $E_B = 0.175 eV$. Na figura 3.24 (b) *mounds* com várias monocamadas de altura aparecem na superfície. Além disso a distribuição do tamanho e da posição dos *mounds*

é uniforme sendo que a presença dos vales não parece afetá-la. No entanto os *mounds*, ou estruturas tipo-*mound*, observados experimentalmente em CBE [36] são afetados pela presença dos vales pois quando o crescimento ocorre sobre uma superfície inicial sem vales (*buffer layer*) os *mounds* não aparecem. Por outro lado, o tipo de *mound* mostrado na figura 3.24 (b) foi observado em filmes crescidos por MBE [25, 37] e geralmente sua formação é associada ao efeito da barreira de canto (barreira Schwoebel).

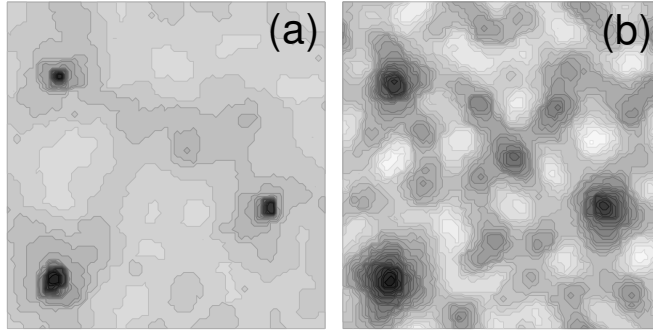


Figura 3.24: Morfologias finais de um crescimento com $E_B = 0$ (a) e com $E_B = 0.175\text{eV}$ (b) sobre a superfície mostrada na figura 3.20 (b) após 100 MLs depositadas e um tratamento térmico de 20s. As condições de crescimento usadas foram $F = 1\text{ML/s}$ e $T = 480^\circ\text{C}$.

A diferença entre as morfologias dos filmes crescidos por MBE [25, 37] e por CBE [36] pode estar associada aos precursores usados em cada técnica. Resultados experimentais sugerem que a presença de Hidrogênio reduz o valor da barreira de canto [29, 52]. Como o hidrogênio está presente quando a técnica CBE é usada, sua interação com a superfície em crescimento pode influenciar na formação das estruturas observadas em filmes de GaAs crescidos por essa técnica. Van Nostrand *et al.* [29] mostraram que a razão de aspecto das estruturas tipo-*mound* é reduzida pela presença de átomos de hidrogênio durante o crescimento de filmes de GaAs sobre substratos rugosos utilizando a técnica MBE com fontes gasosas (*Gas-Source Molecular Beam Epitaxy - GSMBE*). Num estudo da homoepitaxia de filmes de GaAs crescidos por MBE com a presença de hidrogênio sobre substratos de várias orientações, Notzel *et al.* observaram uma influência significativa dos átomos de H na morfologia dos filmes. Para o caso nominal observou-se uma planarização da superfície quando o H foi acrescentado ao crescimento. Por outro lado, para o caso vicinal, por exemplo para o substrato GaAs(311)A, a presença de H favorece o mecanismo de *step bunching* (agrupamento de degraus multiatômicos), que geralmente está associado ao modo fluxo de degraus.

Baseados nesses aspectos Notzel *et al.* sugeriram que os átomos de hidrogênio são responsáveis pela redução da barreira de canto levando a um aumento na taxa de incorporação nos sítios situados nos cantos dos degraus permitindo assim uma planarização da superfície para o caso nominal [52].

Além disso os átomos de hidrogênio podem ter efeitos diferentes nos degraus terminados em Ga (superfície tipo A) e nos terminados em As (superfície tipo B) nas superfícies de filmes de GaAs. Salmi *et al.* obtiveram valores diferentes para as barreiras de canto nas superfícies tipo A e B vistas pelos átomos de Ga e As usando dinâmica molecular [53]. Nesse trabalho, somente a barreira de canto para o movimento de átomos de Ga através dos degraus terminados em As não é desprezível. Desde que a difusão se deve essencialmente aos átomos de Ga, o efeito na difusão superficial causada pelos átomos de hidrogênio pode ter sua origem na interação destes com os degraus terminados em As. Isso explicaria o aspecto circular das estruturas tipo-*mound* encontradas no crescimento usando CBE [36] e GSMBE [29]. Uma discussão sobre uma possível alteração no modelo para incorporar o efeito do Hidrogênio é feita no Apêndice C onde analisamos o crescimento nos casos uni e bidimensional. A análise unidimensional permitiu estudar o comportamento da corrente espacial próxima à região dos vales para um perfil de dimensões semelhantes às encontradas experimentalmente.

Uma outra forma de comparar os resultados experimentais com os obtidos pelas simulações é analisar a função correlação para essas situações. As figuras 3.25 (a) e (b) mostram a evolução da função correlação para o crescimento no caso experimental e para a simulação ($E_B = 0$), respectivamente, sobre superfícies iniciais rugosas. As funções correlação experimentais foram obtidas de filmes homoepitaxiais de GaAs crescidos por CBE [36].

Nos dados experimentais vemos a diminuição do valor do expoente α com o tempo, bem como dos valores de correlação. O valor do expoente tende para aquele observado para o filme crescido com as mesmas condições porém sobre uma superfície plana (*buffer layer*, $w = 1.5\text{\AA}$), $\alpha \sim 0.4$. Num estudo de vários crescimentos de GaAs e InP por MBE, Lengel *et al.* determinaram faixas do expoente α que caracterizariam as morfologias finais dos filmes [54]. A faixa de $\alpha \simeq 0.4 - 0.6$ foi observada em crescimentos onde a morfologia final apresentava estruturas piramidais. Para $\alpha \simeq 0.2 - 0.3$ morfologias com aspecto plano eram observadas. Analisando os valores de α da figura 3.25 vemos que, durante a planarização, o expoente α se encontra na faixa $\alpha \simeq 0.4 - 0.7$. A comparação com a faixa encontrada por Lengel *et al.* indicaria a característica do crescimento de estruturas piramidais. Assim, com a diminuição do expoente α , tendendo para o valor encontrado para um crescimento

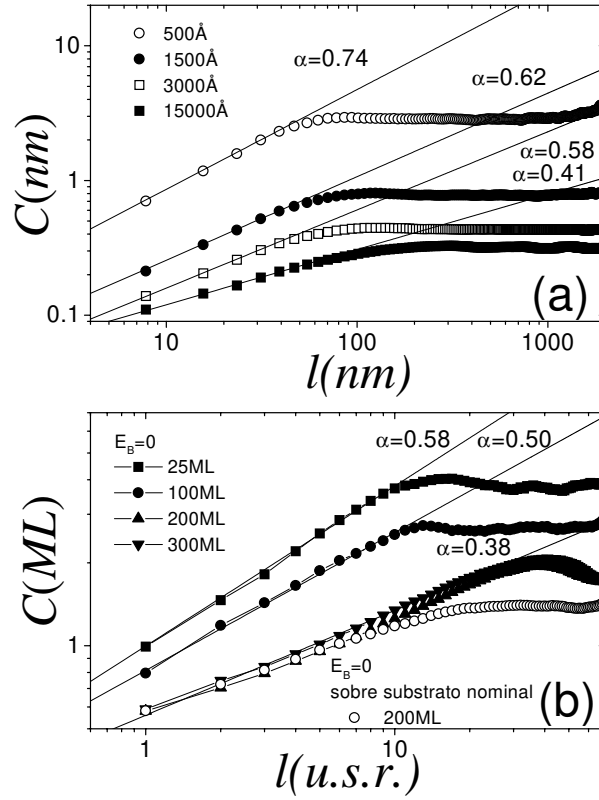


Figura 3.25: Evolução temporal da função correlação para o caso experimental (a) e para a simulação (b). O crescimento foi realizado sobre um substrato rugoso (com vales) (a) e sobre a superfície mostrada na figura 3.20-b (b). As amostras experimentais foram crescidas com $T = 530^\circ C$ com uma taxa de crescimento de 0.8 nm/s . As simulações foram realizadas com $E_B = 0$, $T = 480^\circ C$ e $F = 1 \text{ ML/s}$.

sobre uma superfície plana ($\alpha \simeq 0.3 - 0.4$), mostrada na figura 3.25, podemos considerar a formação de *mounds* em filmes de GaAs crescidos por CBE como um transiente na evolução do crescimento sobre substratos rugosos.

Os aspectos qualitativos da situação experimental são reproduzidos pelos resultados de simulação mostrados na figura 3.25 (b). A evolução do expoente α na direção de valores mais baixos pode ser associada a mudanças no valor de $|\nabla h(\vec{x}, t)|$ durante o crescimento. A função $h(\vec{x}, t)$ representa o perfil da superfície no limite contínuo [32]. A superfície do filme apresenta duas regiões onde os termos dominantes da equação que governa o crescimento podem ser diferentes. Uma região é aquela entre os vales onde o valor de $|\nabla h(\vec{x}, t)|$ ($|\nabla h(\vec{x}, t)|_S$) deveria ser desprezível pois essa parte da superfície é essencialmente plana durante todo o crescimento. A outra região é a região dos vales, $|\nabla h(\vec{x}, t)|_{VALES} \gg |\nabla h(\vec{x}, t)|_S$, onde outros termos podem dominar. Quando $E_B = 0$, a planarização ocorre e $|\nabla h(\vec{x}, t)|_{VALES} \rightarrow |\nabla h(\vec{x}, t)|_S$. Durante esse processo uma competição entre os mecanismos de difusão nessas

duas regiões pode levar a mudanças no expoente α . Se $|\nabla h(\vec{x}, t)|$ tornar-se uniforme em toda a superfície, uma equação linear controlaria o crescimento e um valor estável de α seria mantido. O expoente de rugosidade deveria assim tender para o valor do expoente associado ao crescimento sobre uma superfície plana. Isso é observado para resultados experimentais [36] e de simulação (figura 3.25 (b)).

Um comportamento diferente na evolução do expoente α acontece para o caso instável. Experimentalmente, Van Nostrand *et al.* [26] observaram um aumento do valor do expoente com o tempo para a homoeopitaxia de Ge, sistema no qual a instabilidade não era desprezível. A figura 3.26 mostra uma comparação entre a evolução das funções correlação para os casos com e sem E_B de crescimentos realizados sobre a superfície da figura 3.20 (b). Para o caso onde $E_B \neq 0$ vemos um ligeiro aumento do valor do expoente α e dos valores de correlação, ao contrário do que acontece no caso onde $E_B = 0$. A tendência do valor de α para o do crescimento realizado sobre uma superfície plana também pode ser vista na figura 3.26 pela comparação das curvas de correlação para $E_B = 0$ e 200MLs.

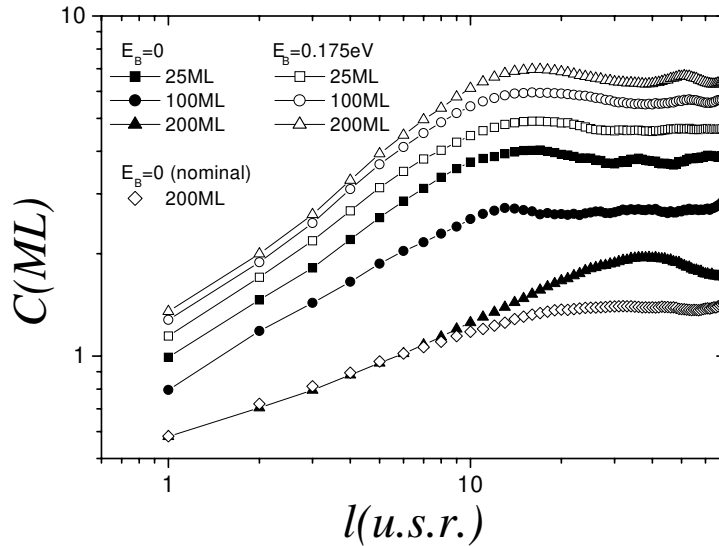


Figura 3.26: Evolução temporal da função correlação para o crescimento estável e instável sobre a superfície inicial mostrada na figura 3.20 (b). As condições de crescimento usadas foram $F = 1 \text{ ML/s}$ e $T = 480^\circ\text{C}$.

O processo de planarização e formação de estruturas tipo-*mound* observadas experimentalmente parece ser bem descrito pelo modelo usado aqui, com exceção de um aspecto. Tanto MBE [25] como CBE [36] mostram um aumento da rugosidade nos primeiros estágios do crescimento. Durante esse estágio os vales se tornam anisotrópicos (com um alinhamento

ao longo da direção $[\bar{1}10]$) e a superfície ainda se mantém rugosa. Para explicar esse aumento da rugosidade outros processos microscópicos deveriam ser inseridos no modelo. Um exemplo seria a interação dos átomos da superfície com os segundos vizinhos. Essa interação se mostrou importante na descrição do crescimento de filmes sobre estruturas em forma de V por Haider *et al.* [23]. Como as paredes laterais dos vales formam um ângulo de $15-28^\circ$ [36] com a horizontal, eles poderiam ser comparados com as estruturas em forma de V. Nesse caso a interação com segundos vizinhos poderia não ser desprezível na região dos vales. Este efeito, contudo, não foi incluído em nossa simulação até aqui, permanecendo como objeto de trabalhos futuros.

Capítulo 4

Conclusões

Neste trabalho estudamos o crescimento epitaxial através de um modelo simples utilizando o método Monte Carlo Cinético. Esse modelo nos permitiu reproduzir vários aspectos do crescimento epitaxial como a transição de modos de crescimento e a formação e evolução de estruturas piramidais (*mounds*).

Além disso, verificamos que o comprimento médio de difusão dos átomos na superfície diminui quando o sistema apresenta instabilidade ($E_B \neq 0$). Isso ocorre pela presença dos *mounds* na superfície o que leva à diminuição do tamanho dos terraços. Essa diminuição faz com que os átomos se incorporem mais rapidamente a um degrau, diminuindo assim o comprimento de difusão.

A presença de diferentes tipos de anisotropia como diferença nas energias de ligação, associada ou não com uma barreira Schwoebel isotrópica, ou apenas uma barreira Schwoebel anisotrópica, originou diferentes estruturas superficiais. Pode-se realizar a comparação destes resultados com morfologias obtidas experimentalmente e a partir daí, em princípio, identificar o tipo de anisotropia que poderia melhor descrever o sistema analisado.

Realizamos também um estudo da influência de um caso particular de substrato rugoso na evolução da morfologia de filmes crescidos sobre esse tipo de substrato. Com a utilização desse substrato na simulação e usando $E_B = 0$ foi possível reproduzir qualitativamente resultados experimentais de GaAs crescidos por epitaxia de feixe químico. Dentre os aspectos reproduzidos estão o processo de planarização da superfície inicial, a formação de estruturas tipo-*mound* durante essa planarização e a diminuição do expoente de rugosidade (α) com o tempo. Verificamos que em certos casos o tamanho das estruturas tipo-*mound* é limitado pelo tamanho e distribuição dos vales que caracterizam a rugosidade da superfície inicial.

Pela análise conjunta de simulação e experimento pudemos confirmar que o efeito da barreira Schwoebel é desprezível para sistemas GaAs/GaAs crescidos por CBE. Dessa forma, ao considerarmos o crescimento sobre os substratos rugosos analisados aqui, observamos a possibilidade da formação de estruturas tipo-*mound* mesmo quando o efeito Ehrlich-Schwoebel é desprezível.

Referências Bibliográficas

- [1] R. L. Schwoebel e E. J. Shipsey. “Step motion on crystal surfaces”. *Journal of Applied Physics*, **37**(10):3682–3686, 1966.
- [2] F. Family. “Dynamic scaling and phase transitions in interface growth”. *Physica A*, **168**:561–580, 1990.
- [3] Z.-W. Lai e S. Das Sarma. “Kinetic growth with surface relaxation: Continuum versus atomistic models”. *Physical Review Letters*, **66**:2348–2351, 1991.
- [4] J. Villain. “Continuum models of crystal growth from atomic beams with and without desorption”. *J. Phys. I*, **1**:19–42, 1991.
- [5] M. Siegert e M. Plischke. “Slope selection and coarsening in molecular beam epitaxy”. *Physical Review Letters*, **73**:1517–1520, 1994.
- [6] I. Elkinani e J. Villain. “Growth roughness and instabilities due to the Schwoebel effect: a one-dimensional model”. *J. Phys. I France*, **4**:949–973, 1994.
- [7] P. Politi e J. Villain. “Ehrlich-Schwoebel instability in molecular-beam epitaxy: a minimal model”. *Physical Review B*, **54**:5114–5129, 1996.
- [8] T. J. da Silva e J. G. Moreira. “Kinetic roughening on rough substrates”. *Physical Review E*, **56**:4880–4883, 1997.
- [9] A. Madhukar. “Far from equilibrium vapour phase growth of lattice matched III-V compound semiconductor interfaces: some basic concepts and Monte-Carlo computer simulations”. *Surface Science*, **132**:305–312, 1983.

- [10] J. Singh e A. Madhukar. “Surface orientation dependent surface kinetics and interface roughening in molecular beam epitaxial growth of III-V semiconductors: A Monte Carlo study”. *J. Vac. Sci. Technol. B*, **1**(2):344–374, 1983.
- [11] F. Family. “Scaling of rough surfaces: effects of surface diffusion”. *J. Phys. A : Math. Gen.*, **19**:L441–L446, 1986.
- [12] B. Ricketts, D. D. Vvedensky e S. Clarke. “Seeing is believing”. *Physics World*, pages 39–42, December 1989.
- [13] S. Clarke, M. R. Wilby e D. D. Vvedensky. “Theory of homoepitaxy on Si(001)”. *Surface Science*, **5**:91–110, 1991.
- [14] T. Shitara, D. D. Vvedensky, M. R. Wilby, J. Zhang, J. H. Neave e B. A. Joyce. “Misorientation dependence of epitaxial growth on vicinal GaAs(001)”. *Physical Review B*, **46**:6825–6833, 1992.
- [15] T. Shitara, D. D. Vvedensky, M. R. Wilby, J. Zhang, J. H. Neave e B. A. Joyce. “Step-density variations and reflection high-energy electron-diffraction intensity oscillations during epitaxial growth on vicinal GaAs(001)”. *Physical Review B*, **46**:6815–6824, 1992.
- [16] P. Smilauer e D. D. Vvedensky. “Step-edges barriers on GaAs(001)”. *Physical Review B*, **48**:17603–17606, 1993.
- [17] P. Smilauer e D. D. Vvedensky. “Coarsening and slope evolution during unstable epitaxial growth”. *Physical Review B*, **52**:14263–14272, 1995.
- [18] S. Pal e D. P. Landau. “Monte Carlo simulation and dynamic scaling of surfaces in MBE growth”. *Physical Review B*, **49**:10597–10606, 1994.
- [19] Yu-Min Houn. “Chemical Beam Epitaxy”. *Critical Reviews in Solid State and Material Sciences* , **17**(4):277–306, 1992.
- [20] S. Clarke e D. D. Vvedensky. “Origin of reflection high-energy electron-diffraction intensity oscillations during molecular beam epitaxy: a computational modeling approach”. *Physical Review Letters*, **21**:2235–2238, 1987.
- [21] M. R. Wilby, D. D. Vvedensky e A. Zangwill. “Scaling in a solid-on-solid model of epitaxial growth”. *Physical Review B*, **46**:12896–12898, 1992.

- [22] P. Smilauer, M. R. Wilby e D. D. Vvedensky. “Reentrant layer-by-layer growth: a numerical study”. *Physical Review B*, **47**:4119–4122, 1993.
- [23] N. Haider, M. R. Wilby e D. D. Vvedensky. “Growth kinetics on non-planar substrates”. *Journal of Crystal Growth*, **127**:922–926, 1993.
- [24] G. Ehrlich e F.G. Hudda. “Atomic view of surface self-diffusion - Tungsten on Tungsten”. *The Journal of Chemical Physics*, **44**(3):1039–1049, 1966.
- [25] C. Orme, M. D. Johnson, K. -T. Leung, B. G. Orr, P. Smilauer e D. D. Vvedensky. “Studies of large scale unstable growth formed during GaAs(001) homoepitaxy”. *Journal of Crystal Growth*, **150**:128–135, 1995.
- [26] J. E. Van Nostrand, S. Jay Chey, M. -A. Hasan, D. G. Cahill e J. E. Greene. “Surface morphology during multilayer epitaxial growth of Ge(001)”. *Physical Review Letters*, **74**:1127–1130, 1995.
- [27] K. Thurmer, R. Koch, M. Weber e K. H. Rieder. “Dynamic evolution of pyramid structures during growth of epitaxial Fe(001) films”. *Physical Review Letters*, **75**:1767–1770, 1995.
- [28] J. A. Strosio, D. T. Pierce, M. D. Stiles, A. Zangwill e L. M. Sander. “Coarsening of unstable surface features during Fe(001) homoepitaxy”. *Physical Review Letters*, **75**:4246–4249, 1995.
- [29] J. E. Van Nostrand, S. Jay Chey, D. G. Cahill, A. E. Botchkarev e H. Morkoç. “Surface morphology of GaAs(001) grown by solid- and gas-source molecular beam epitaxy”. *Surface Science*, **346**:136–144, 1996.
- [30] M. D. Pashley, K. W. Haberern e J. M. Gaines. “Scanning tunneling microscopy comparison of GaAs(001) vicinal surfaces grown by molecular beam epitaxy”. *Applied Physics Letters*, **58**(4):406–408, 1991.
- [31] V. R. Coluci, M. A. Cotta e M. M. G. de Carvalho. “Growth of Be-doped homoepitaxial GaAs films on rough substrates”. *Journal of Crystal Growth*, **205**:36–42, 1999.
- [32] A. L. Barabási e H. E. Stanley. “*Fractal concepts in surface growth*”. Cambridge University Press, 1995.

- [33] P. Meakin. “*Fractals, scaling and growth far from equilibrium*”. Cambridge University Press, 1998.
- [34] D. E. Wolf e J. Villain. “Growth with surface diffusion”. *Europhysics Letters*, **13**(5):389–394, 1990.
- [35] M. Kotrla. “Numerical simulatons in the theory of crystal growth”. *Computer Physics Communications*, **97**:82–100, 1996.
- [36] V. R. Coluci, M. A. Cotta, C. A. C. Mendonça, K. M. I-Landers e M. M. G. de Carvalho. “Surface morphologies in GaAs homoepitaxy: mound formation and evolution”. *Physical Review B*, **58**:1947–1953, 1998.
- [37] M. F. Gyure, J. J. Zinck, C. Ratsh e D. D. Vvedensky. “Unstable growth on rough surfaces”. *Physical Review Letters*, **81**:4931–4934, 1998.
- [38] K. Binder. “*Monte Carlo Methods in Statistical Physics*”, volume 7. Berlin Heidelberg New York, 1979.
- [39] N. Metropolis, A. W. Rosenbluth, M. N. Rosenbluth, A. H. Teller e E. Teller. “Equation of state calculations by fast computing machines ” . *The Journal of Chemical Physics*, **21**(6):1087–1092, 1953.
- [40] J. D. Weeks e G. H. Gilmer. “Dynamics of crystal growth”. *Advanced Chemical Physics*, **40**:157–228, 1979.
- [41] S. Das Sarma, C. J. Lanczycki, R. Kotlyar e S. V. Ghaisas. “Scale invariance and dynamical correlations in growth models of molecular beam epitaxy”. *Physical Review E*, **53**:359–388, 1996.
- [42] Chun-Li Liu e J.B. Adams. “Diffusion behavior of single adatoms near and at steps during growth of metallic thin films on Ni surfaces”. *Surface Science*, **294**(5):197–210, 1993.
- [43] J.E. Mahan, K.M. Geib, G.Y. Robinson e R.G. Long. “A review of the geometrical fundamental of reflection high-energy electron diffraction with application to silicon surfaces”. *J. Vac. Sci. Technol. A*, **8**(5):3692–3700, 1990.

- [44] J.H. Neave, B.A. Joyce, P.J. Dobson e N. Norton. “Dinamics of film growth of GaAs by MBE from RHEED observations”. *Applied Physics A*, **31**:1–8, 1983.
- [45] J. Sudijono, M. D. Johnson, C. W. Snyder, M. B. Elowitz e B. G. Orr. “Surface evolution during molecular beam epitaxy deposition of GaAs”. *Physical Review Letters*, **69**:2811–2814, 1992.
- [46] M. Siegert e M. Plischke. “Formation of pyramids and mounds in molecular beam epitaxy”. *Physical Review E*, **53**:307–318, 1996.
- [47] E. Ganz, S. K. Theiss, I-Shouh Hwang e J. Golovchenko. “Direct measurement of diffusion by hot tunneling microscopy: activation energy, anisotropy and long jumps”. *Physical Review Letters*, **68**:1567–1570, 1992.
- [48] M. A. Cotta, R. A. Hamm, T. W. Staley, S. N. G. Chu, L. R. Harriot, M. B. Panish e H. Temkin. “Kinetic surface roughening in molecular bem epitaxy of InP” . *Physical Review Letters*, **70**:4106–4109, 1993.
- [49] J. W. Evans, D. E. Sanders, P. A. Thiel e A. E. DePristo. “Low-temperature epitaxial growth of thin metal films”. *Physical Review B*, **41**:5410–5413, 1990.
- [50] V.R. Coluci e M.A. Cotta. “Influence of rough substrates on the morphology evolution of epitaxial films”. *Physical Review B*, **61**(20):13703–13709, 2000.
- [51] J. Krug e M. Rost. “Linear theory of unstable growth on rough surfaces”. *Physical Review B*, **60**(24):R16334–R16337, 1999.
- [52] R. Notzel, H.-P. Schonherr, Z. Niu, L. Doweritz e K. H. Ploog. “Uniform quantum wire and quantum dot arrays by atomic hydrogen assisted MBE on patterned high-index substrates: role of atomic hydrogen in natural self-faceting”. *Journal of Crystal Growth*, **201/202**:814–818, 1999.
- [53] M. A. Salmi, M. Alatalo, T. Ala-Nissila e R. M. Nieminen. “Energetics and diffusion paths of gallium and arsenic adatoms on flat and stepped GaAs(001) surfaces”. *Surface Science*, **425**:31–47, 1999.

- [54] G. Lengel, R. J. Phaneuf, E. D. Williams, S. Das Sarma, W. Beard e F. G. Johnson. “Nonuniversality in mound formation during semiconductor growth”. *Physical Review B*, **60**:R8469–R8472, 1999.
- [55] C.A.C. Mendonça, M.A. Cotta, E.A. Meneses e M.M.G. de Carvalho. “Self-assembled islands on strained systems: control of formation, evolution, and spatial distribution”. *Physical Review B*, **57**(19):12501–12505, 1998.
- [56] A. M. Ferrenberg, D. P. Landau e Y. Joanna Wong. “Monte Carlo simulations: hidden errors from ‘good’ random number generators”. *Physical Review Letters*, **69**:3382–3384, 1992.
- [57] William Bown. “Gambling on the wrong numbers from Monte Carlo”. *New Scientist*, page 16, 24 Abril 1993.
- [58] D. D. Vvedensky, S. Clarke, K. J. Hughill, A. K. Myers-Beaghton e M. R. Wilby. “Growth kinetics on vicinal (001) surfaces: the solid-on-solid model of molecular beam epitaxy”. in *Kinetics of ordering and growth at surfaces*, edited by M. G. Lagally - Plenum Press New York:297–311, 1990.
- [59] B.B. Mandelbrot. “*The Fractal Geometry of Nature*”. W.H. Freeman and company - New York, 1983.
- [60] F. Family e T. Vicsek. “Scaling of the active zone in the Eden process on percolation networks and the ballistic deposition model”. *J. Phys. A: Math. Gen.*, 18:L75–L81, 1985.
- [61] Y. Miyamoto e S. Nonoyama. “First-principles calculations of molecular and atomic hydrogen reactions on As terminated GaAs(100) surfaces”. *Physical Review B*, **46**:6915–6921, 1992.

Apêndice A

Programa de simulação de crescimento epitaxial

Nesse apêndice serão discutidos os aspectos gerais do programa de simulação. Inicialmente apresentaremos seu funcionamento básico. Justificaremos o uso do comprimento da matriz $L = 100$ nas simulações através de uma análise dos tempos de execução do programa e confiabilidade dos resultados. Finalmente serão discutidos também alguns testes realizados nos estágios iniciais do desenvolvimento do programa.

A.1 Descrição do programa

O programa atual de simulação está escrito na linguagem C. Esse programa foi inicialmente escrito usando a linguagem Pascal mas esta foi substituída pela atual por motivos de otimização do tempo de execução do programa. Após a mudança de linguagem o programa foi novamente testado e otimizado.

Dentro da estrutura do programa, o substrato e o filme posteriormente crescido são representados por uma matriz h de $L \times L$ elementos. A cada elemento é associada a altura do filme, ou seja, o número de átomos naquele ponto ou sítio. Juntamente com a matriz de alturas uma outra matriz t de mesmo tamanho é usada no programa. O esquema do programa foi baseado no trabalho de Singh e Madhukar [10]. Cada elemento dessa matriz armazena informações sobre os tempos dos próximos eventos de difusão do respectivo sítio. Com a evolução da simulação, alterações nessas matrizes são feitas devido aos processos de

difusão e deposição, determinando assim a evolução do crescimento do filme.

Os parâmetros do modelo são dados de entrada para o programa. Além deles outras variáveis também são necessárias para a simulação: espessura do filme a ser crescido, taxa de crescimento, tempo de realização do tratamento térmico (*annealing*), comprimento L da matriz e substrato inicial.

De uma maneira simplificada a seqüência dos passos executados pelo programa é a seguinte:

1. inicialização da semente do gerador de números pseudo-aleatórios;
2. leitura dos dados de entrada;
3. inicialização da matriz h ;
4. inicialização das demais variáveis;
5. escolha do primeiro sítio de deposição;
6. *loop* de crescimento;
7. realização do tratamento térmico.

O fluxograma do passo 6.) é mostrado abaixo.

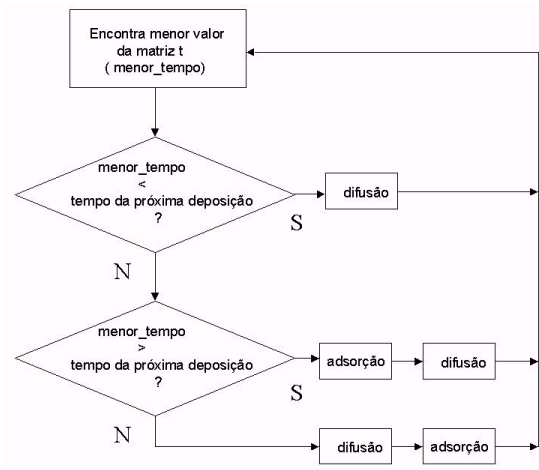


Figura A.1: Fluxograma do passo 6.).

O tratamento térmico visa reproduzir parte do efeito de resfriamento da amostra (*sample cool down*) ocorrido em processos de crescimento reais onde a temperatura decai de forma

lenta até a temperatura ambiente, podendo alterar a morfologia do filme crescido [55]. Os processos cinéticos básicos do crescimento, difusão e deposição, são representados computacionalmente da seguinte forma:

1. deposição: a matriz altura é modificada no ponto onde se situa o sítio escolhido aleatoriamente para a deposição, ou seja, $h[\text{sítio escolhido}] = h[\text{sítio escolhido}] + 1$.
2. difusão: para a difusão são necessários os seguintes passos:
 - (a) encontra-se todos os sítios que possuem o tempo para a próxima difusão igual ao menor valor da matriz $\mathbf{t}$, guardando-os numa lista;
 - (b) escolhe-se aleatoriamente uma direção para se realizar a difusão dentre as possíveis para cada um dos sítios encontrados anteriormente;
 - (c) escolhe-se aleatoriamente um dos sítios encontrados anteriormente, verifica-se se a difusão já foi efetuada para esse sítio e em caso negativo realiza-se a difusão na direção também escolhida anteriormente;
 - (d) atualiza-se os valores dos tempos dos sítios afetados;
 - (e) verifica-se se os outros átomos da lista foram afetados com essa difusão;
 - (f) repete-se (c), (d) e (e) até que todos os átomos da lista tenham realizado a difusão ou que tenham feito uma ligação com outro átomo que estivesse se difundindo;
 - (g) atualiza-se o tempo de crescimento com o valor do menor tempo da matriz $\mathbf{t}$.

A geração de números pseudo-aleatórios é um dos pontos mais importantes em simulações Monte Carlo devendo tomar-se um certo cuidado. Vários trabalhos atentam para esse ponto [56, 57]. Atualmente usamos o gerador que a linguagem C oferece, que obtém os números usando a seguinte fórmula

$$X_{n+1} = (aX_n + c) \mod m \quad (\text{A.1})$$

onde a , c , m são constantes. Necessita-se de um valor inicial X_0 para se iniciar a sequência de números aleatórios. Realizamos testes desse gerador para verificar a existência de tendências na geração dos números aleatórios. Através da análise de histogramas dos números aleatórios gerados para várias faixas (1-4, 1-100 e 1-1000) observamos uma distribuição uniforme desses números, não indicando nenhuma tendência significativa no processo de geração. Além disso,

a reprodução de resultados já obtidos na literatura indica que o gerador usado mostrou-se adequado para as situações abordadas nesse trabalho.

Dentre os parâmetros do modelo e as variáveis de entrada do programa, dois se destacam por influenciarem mais o tempo computacional de simulação. São eles: o comprimento L da matriz e a temperatura de crescimento T . O primeiro por aumentar o tempo de busca na matriz $\mathbf{t}$ e o segundo por afetar exponencialmente a taxa de difusão dos átomos. A escolha do comprimento L para as simulações foi feita conciliando dois aspectos: tempo de CPU gasto pela simulação e obtenção de resultados confiáveis. Valores grandes de L trazem melhores resultados porém o uso deles é restrito pelo grande gasto de tempo de CPU. Para analisar o primeiro aspecto restringimo-nos a um determinado intervalo de valores de temperatura. Esse intervalo ($430^{\circ}\text{C} \leq T \leq 530^{\circ}\text{C}$) está dentro do usado na maioria das simulações. O gráfico seguinte mostra como varia o tempo de CPU gasto em função do comprimento L para as duas temperaturas limites desse intervalo. O tempo de CPU nesse caso corresponde ao tempo necessário para se depositar uma monocamada usando uma taxa de 1ML/s.

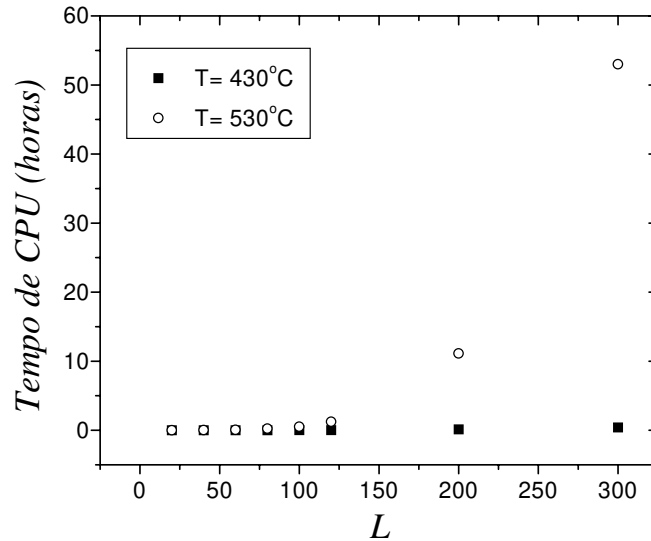


Figura A.2: Influência do tamanho da matriz no desempenho do programa de simulação. As simulações foram feitas numa máquina Alpha-Digital modelo 2100 (275 MHz e 128 Mb RAM).

Para a análise do segundo aspecto verificamos o comportamento da rugosidade e da densidade de degraus em função do tempo de crescimento para vários valores de L a uma única temperatura de 430°C . Os resultados são mostrados na figura A.3.

Vemos que a partir de $L = 100$ poucas modificações são vistas no comportamento geral

das curvas. As variações vistas no gráfico da função rugosidade para $L = 100, 120$ e 200 são menores ou da mesma ordem do que aquelas encontradas quando se realiza várias simulações independentes. Assim o comportamento da curva é bem descrita por $L = 100$. Esse valor de L também se adequa ao primeiro aspecto pois pela figura A.2 vemos que ainda com $L = 100$ temos uma diferença de tempos de simulação entre as duas temperaturas menor do que aquela para $L = 200$. Baseando-se nessas análises e também em trabalhos que usam comprimentos de matrizes dessa ordem [46, 58] escolhemos o valor de $L = 100$ para as simulações feitas nesse trabalho.

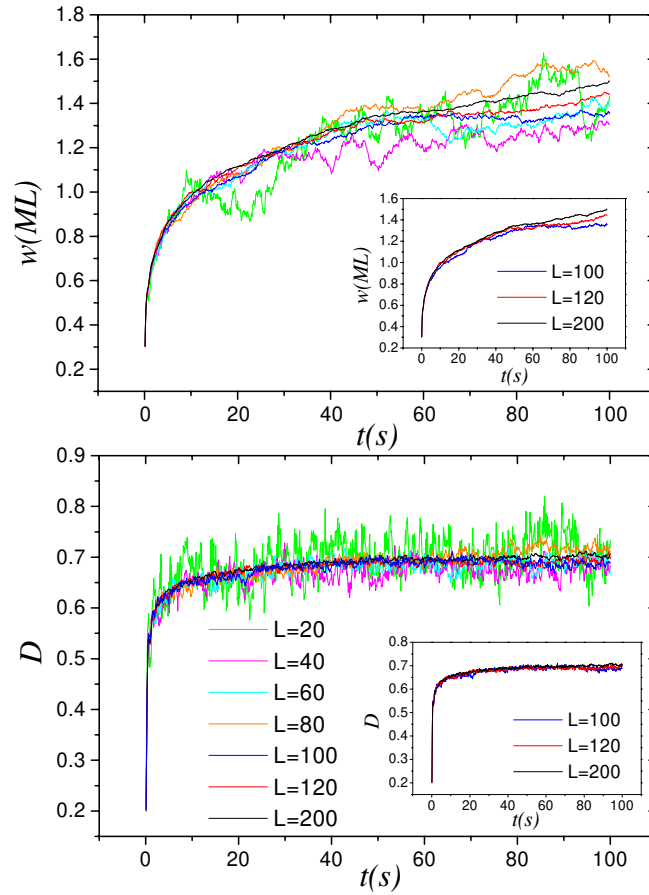


Figura A.3: Evolução temporal da função rugosidade e densidade de degraus obtida de simulações usando diferentes comprimentos de matriz. Os parâmetros de crescimento usados foram $T = 430^\circ C$, $F = 1 ML/s$, $E_B = 0$, $E_{LIG} = 0.23 eV$ e $E_S = 1.54 eV$.

A.2 Testes

Para a aplicação do programa de simulação no estudo de situações experimentais este deve mostrar resultados confiáveis. A confiabilidade foi alcançada realizando testes iniciais no programa. Mostraremos aqui os testes primários que permitiram usar o programa na simulação de resultados já reportados na literatura como mostrado no capítulo 3, seções 3.1 e 3.2 . Os testes primários também foram feitos baseados em resultados já reportados na literatura.

O primeiro teste foi relacionado ao comportamento da função rugosidade para tempos curtos, tempos menores que os necessários para se completar uma monocamada de filme. Nesse regime , o processo de difusão é considerado desprezível pois ele não muda significativamente a largura da interface do filme crescido. Isso ocorre pois a maior parte da difusão superficial se dá pelo movimento dos átomos que foram depositados ($n = 0$). Os átomos que formam a superfície inicial para o crescimento (os quais possuem $n = 4$ para uma superfície inicialmente plana) têm uma taxa de difusão muito menor do que a dos átomos depositados ($n = 0$) e portanto seus movimentos são desprezíveis no regime de submonocamada. Assim, o processo de deposição é considerado mais importante nesse regime. Devido ao caráter aleatório da deposição prevê-se a seguinte evolução de w [11, 18, 32] para o crescimento sobre uma superfície inicialmente plana.

$$w \sim t^{1/2} \tag{A.2}$$

O expoente $\beta = 1/2$ pode ser obtido exatamente ao se considerar que a probabilidade de que um sítio tenha p átomos após N partículas depositadas obedece uma distribuição binomial. Uma outra forma de se obter esse expoente é através do uso de uma equação estocástica que considera um termo associado ao fluxo das partículas incidentes e outro que considera as flutuações aleatórias no processo de deposição [32].

O comportamento da rugosidade é independente da temperatura de crescimento. A reprodução desse aspecto é mostrada na figura A.4 onde se apresenta a evolução de w para tempos curtos para duas temperaturas de crescimento diferentes.

O segundo teste realizado foi a análise do resultado de simulações independentes, ou seja, de simulações com sementes iniciais (X_0) diferentes para a geração da seqüência dos números aleatórios. Esse resultado para 3 simulações diferentes sujeitas aos mesmos parâmetros é mostrada na figura A.5.

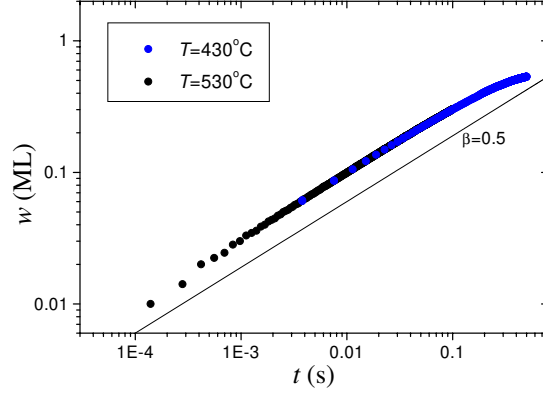


Figura A.4: Evolução da função rugosidade nos estágios iniciais de crescimento. Os parâmetros usados foram $F = 1 \text{ ML/s}$, $E_B = 0$, $E_{LIG} = 0.23 \text{ eV}$ e $E_S = 1.54 \text{ eV}$.

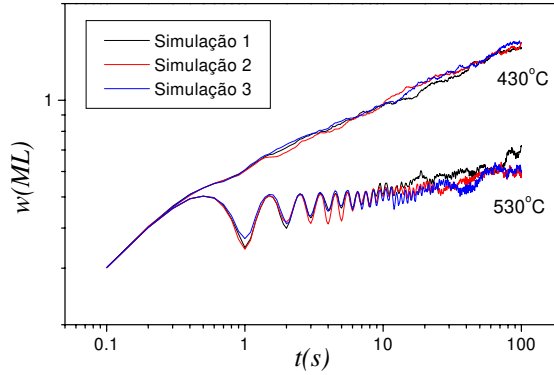


Figura A.5: Evolução da rugosidade para 3 simulações independentes. Os parâmetros usados foram $F = 1 \text{ ML/s}$, $E_B = 0$, $E_{LIG} = 0.23 \text{ eV}$ e $E_S = 1.54 \text{ eV}$.

Nota-se que a análise qualitativa geral da simulação é pouco influenciada pelos resultados das diferentes simulações indicando uma boa convergência do programa. No entanto para uma análise mais quantitativa, como obtenção precisa do expoente β , de possíveis valores assintóticos da rugosidade ou ainda análise de mudanças de regimes (mudanças de β) torna-se necessária a realização de uma média sobre várias simulações independentes.

Finalmente, o último teste primário foi feito na deposição. Apesar da escolha dos sítios de deposição ser aleatória, a distribuição dos tempos de deposição segue uma regra determinística (fluxo constante). Visando estudar possíveis variações nos resultados obtidos da simulação - principalmente na evolução das funções w e D - causadas por uma distribuição não determinística dos tempos de deposição, fizemos o seguinte teste. Permitimos que o tempo de deposição fosse escolhido dentro de um intervalo em torno do tempo t_i obtido da

condição de fluxo constante. Essa escolha obedecia uma probabilidade gaussiana em torno de t_i . Os testes foram feitos para 3 distribuições gaussianas com larguras δ diferentes como mostra a figura A.6. As distribuições têm a seguinte forma:

$$P_a^i(t) = \exp \left[- \left(\frac{2(t - t_i)}{\delta} \right)^2 \right]. \quad (\text{A.3})$$

$\Delta t = (FL^2)^{-1}$ é o intervalo entre os tempos de deposição obtidos para o caso onde $\delta = 0$.

Escolhia-se um tempo t^* ($t_i - \Delta t < t^* < t_i + \Delta t$) e calculava-se $P_a^i(t^*)$. Se essa probabilidade fosse maior que um número aleatório ρ ($0 < \rho \leq 1$) o instante t^* era escolhido para ser o próximo tempo para se realizar a deposição. Caso a probabilidade fosse menor que ρ o valor t_i era adotado.

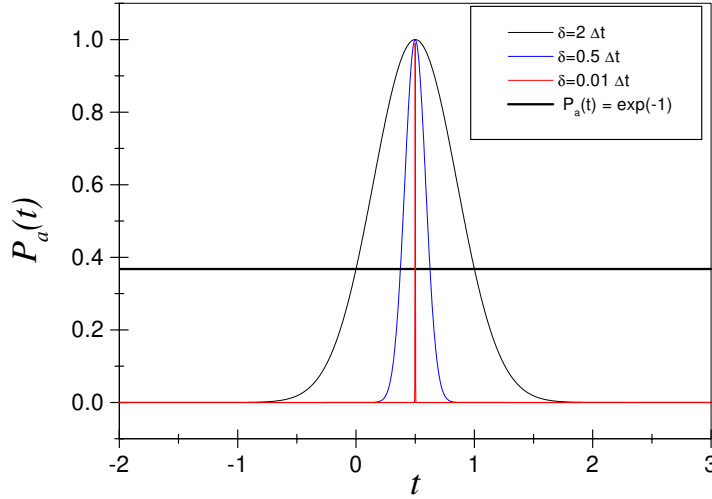


Figura A.6: Funções gaussianas com diferentes valores de δ em torno de $t_0 = 0.5$.

A distribuição determinística dos tempos é o caso particular quando a função gaussiana tende para a função delta de Dirac.

O resultado desse teste é apresentado na figura A.7 para a evolução das funções w e D .

O gráfico mostra a comparação de simulações com a regra aleatória para a distribuição dos tempos ($\delta \neq 0$) com a média obtida das simulações apresentadas na figura A.5. Nota-se que a regra aleatória causa variações da ordem das encontradas para o caso de simulações independentes. Portanto a análise do crescimento pode ser feita simplesmente baseando-se na regra determinística para distribuição dos tempos de deposição sem ocorrer perda de generalidade.

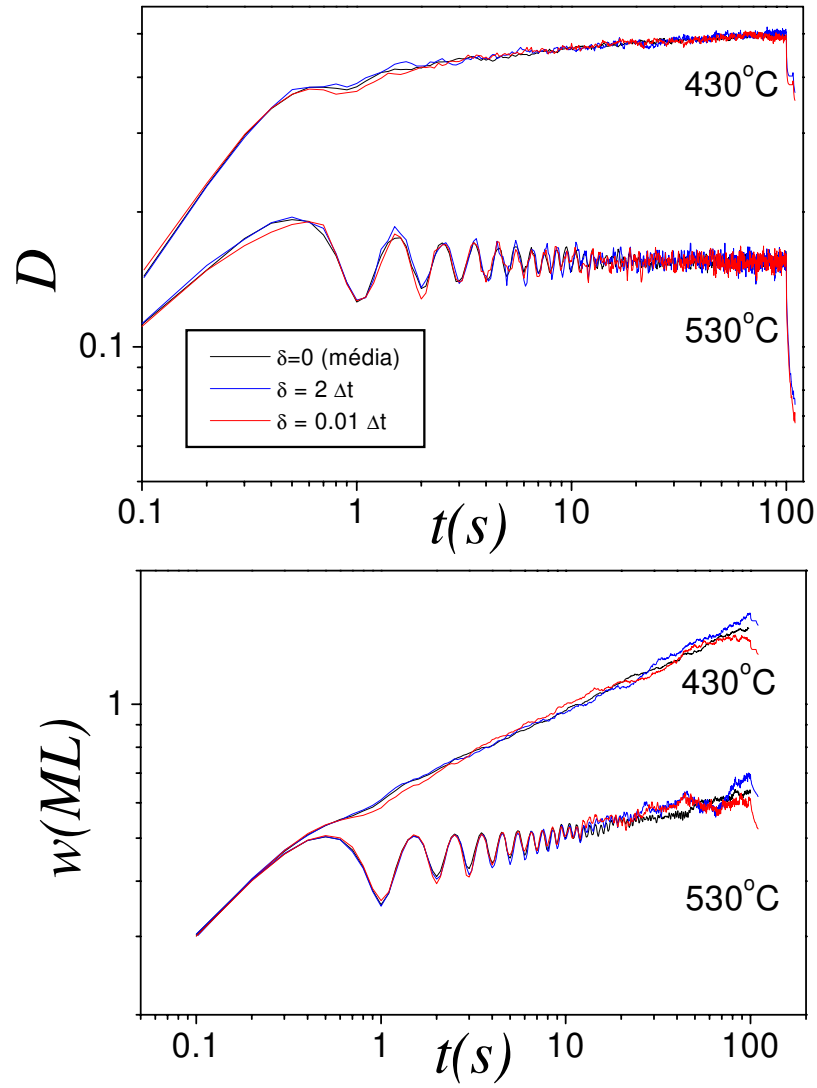


Figura A.7: Teste para a deposição. Os parâmetros usados foram os mesmos da figura A.5.

Apêndice B

Expoentes de Escala

Para definirmos os expoentes críticos vamos fazer uma breve introdução sobre geometria fractal.

A geometria fractal - introduzida por Benoit B. Mandelbrot [59] - permite analisar objetos geométricos possuidores de uma forma complexa e irregular. A palavra fractal é originária do adjetivo latim *fractus*, associado ao verbo *frangere* que significa quebrar, criar irregularidades.

Uma forma de medirmos o comprimento ℓ de uma linha é contarmos o número $N(l)$ de unidades de comprimento l que a curva possui. Assim o comprimento da curva seria dado por

$$\ell(l) = N(l)l. \quad (\text{B.1})$$

Estendendo esse resultado para o caso d -dimensional teríamos que o volume V em d dimensões de um objeto seria

$$V(l) = N(l)l^d, \quad (\text{B.2})$$

onde d é a menor dimensão euclidiana onde se pode inserir o objeto e $N(l)$ é agora o número de caixas d -dimensional que cobre o objeto.

Para um objeto não-fractal o volume V é independente do tamanho da unidade de medida l de forma que

$$N(l) \sim l^{-d}. \quad (\text{B.3})$$

Por outro lado, para um objeto fractal

$$N(l) \sim l^{-d_f} \quad (\text{B.4})$$

onde $d_f < d$ é a dimensão fractal do objeto.

Se uma função $F(x_1, x_2, \dots, x_n)$ representar um fractal ela terá a seguinte propriedade de escala [33]

$$F(x_1, x_2, \dots, x_n) \simeq b_1^{-\alpha_1} \dots b_n^{-\alpha_n} F(b_1 x_1, b_2 x_2, \dots, b_n x_n). \quad (\text{B.5})$$

Um fractal é chamado auto-similar quando $\alpha_i = 1$, ou seja, quando ele possuir a mesma forma após uma transformação isotrópica de escala. Quando $\alpha_i \neq 1$ o fractal é denominado auto-afim de maneira que é necessário uma transformação anisotrópica de escala para ocorrer a invariância de forma do objeto fractal.

Verifica-se que a função $h(x)$ que representa uma interface rugosa tem a propriedade de auto-afinidade de modo que

$$h(x) \simeq b^{-\alpha} h(bx) \quad (\text{B.6})$$

onde α é denominado expoente de rugosidade.

Num estudo de interfaces rugosas Family e Vicsek [60] obtiveram a seguinte relação para a rugosidade

$$w(L, t) \simeq L^\alpha f(t/L^z). \quad (\text{B.7})$$

A função $f(u)$ mostra o seguinte comportamento

$$f(u) \simeq \begin{cases} u^\beta, & u \ll 1 \\ \text{const}, & u \gg 1 \end{cases} \quad (\text{B.8})$$

O expoente β é chamado expoente de crescimento e $z = \alpha/\beta$ de expoente dinâmico.

Dessa forma a função rugosidade tem um comportamento dinâmico para tempos curtos,

$$w(L, t) \simeq t^\beta, t \ll L^z \quad (\text{B.9})$$

e um caráter auto-afim para tempos longos

$$w(L, t) \simeq L^\alpha, t \gg L^z \quad (\text{B.10})$$

A grandeza analisada em nosso trabalho, a função correlação C , é útil para se obter o expoente de rugosidade. Isso se dá pois, a partir da hipótese de uma lei de escala dinâmica, para valores pequenos de x , C possui a seguinte propriedade

$$C(x) \sim x^\alpha \quad (\text{B.11})$$

Fenômenos envolvendo leis de escalas geralmente são classificados em termos dos expoentes de escala (α, β, z) uma vez que estes são praticamente invariantes frente a pequenas

modificações nos sistemas analisados. Desse modo, sistemas com os mesmos expoentes são ditos pertencer à mesma classe de universalidade. As equações de crescimento são geradas baseando-se em processos físicos que podem estar presentes na superfície ao longo do crescimento. A partir dessas equações é possível obter os expoentes de escala através de métodos como grupo de renormalização, resolução numérica das equações ou aplicando o conceito de invariância de escala [32]. Com os expoentes identifica-se a classe de universalidade a que um ou mais processos físicos pertencem. A análise inversa também pode ser feita. Obtendo a classe de universalidade em que o sistema se encontra através da determinação dos expoentes podemos deduzir quais os processos físicos mais importantes no sistema pela comparação com equações já propostas.

Apêndice C

Efeito hidrogênio

Apresentamos nesse apêndice uma discussão sobre uma possível mudança do modelo utilizado para incluir o efeito de átomos de hidrogênio no crescimento. Inicialmente discutiremos as hipóteses sobre esse efeito baseando-nos em resultados experimentais e teóricos que abordaram esse problema. Em seguida apresentaremos a alteração feita no modelo, comentando suas limitações e consequências. Finalmente mostraremos os resultados obtidos com essa mudança.

C.1 Discussão do problema

A presença de átomos de hidrogênio (H) na superfície e suas interações com os diferentes tipos de degraus foram as hipóteses sugeridas para a explicação da diminuição de efeito Ehrlich-Schwoebel (ES) em sistemas GaAs/GaAs crescidos por CBE, quando comparados com MBE.

Essas hipóteses foram baseadas em trabalhos experimentais como o de Van Nostrand *et al.* [29] onde foi observado uma diminuição da anisotropia da forma dos *mounds*, inicialmente alinhados paralelos à direção $[\bar{1}10]$, quando o crescimento era realizado na presença de H na superfície. Isso pode sugerir um efeito do H mais acentuado em determinadas direções da superfície do filme. Em outro trabalho, Notzel *et al.* [52] observaram uma superfície mais plana com *mounds* de poucas monocamadas de altura, quando H era introduzido na câmara MBE durante o crescimento. Uma conclusão desse trabalho foi que um dos papéis do H na superfície seria o de aumentar a probabilidade de incorporação nos degraus possibilitando

assim a obtenção de uma superfície mais plana.

No entanto, da análise das observações experimentais ainda não é possível determinar o tipo de interação entre o H e os degraus na superfície em crescimento. Além do tipo de interação, como ela acontece e quais as mudanças que ocorrem nas vizinhanças do H adsorvido também não são totalmente compreendidas.

Um estudo microscópico dessa interação foi realizado por Miyamoto e Nonoyama [61] ao calcularem por primeiros princípios as reações do H com superfícies de GaAs(001) terminadas em As (degraus tipo B). Eles calcularam a configuração mais estável para o H em algumas posições próximas ao degrau, e verificaram que os dímeros de As presentes, embora preservados na superfície, eram distorcidos pela presença do H.

Obviamente não podemos analisar todos os detalhes microscópicos da interação H-superfície com o modelo de uma espécie utilizado aqui. No entanto podemos alterar o modelo para que esses detalhes sejam incorporados de forma simplificada em mudanças nas energias de ativação da difusão. Nosso objetivo aqui é verificar se a mudança realizada pode levar a observação dos dois papéis atribuídos à presença do H:

- i.) aumento da incorporação dos átomos no degraus;
- ii.) diminuição do efeito Ehrlich-Schwoebel.

C.2 Alteração do modelo

Para apresentarmos a mudança realizada no modelo vamos inicialmente analisar as possíveis configurações das barreiras de energia para a difusão (figura C.1). Para o caso onde $E_B = 0$ temos a configuração mostrada na figura C.1(a). Nessa situação não vemos nenhuma barreira que impeça o átomo de chegar ao canto do degrau nem de transpô-lo. Quando $E_B \neq 0$ (figura C.1(b)) o movimento de chegada ao degrau é prejudicado.

Uma primeira mudança que poderia ser realizada seria diminuir o valor de E_B , o que estaria diminuindo diretamente o efeito Ehrlich-Schwoebel. No entanto, Smilauer e Vvedensky [17] observaram um aumento da rugosidade e presença de *mounds*, após o desaparecimento das oscilações, mesmo quando o valor de E_B era reduzido de 0.175eV para 0.05eV. Assim a mudança no valor de E_B poderia levar tanto a um aumento da incorporação no degrau como a diminuição do efeito Ehrlich-Schwoebel mas não poderia reproduzir o processo de planarização de um substrato com vales.

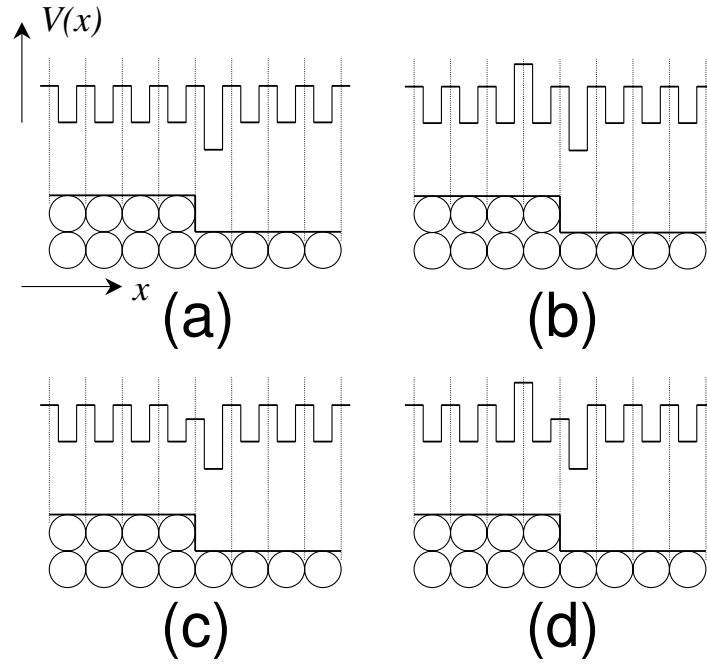


Figura C.1: Configurações possíveis para o potencial $V(x)$ associado ao movimento atômico na direção x baseado no modelo adotado aqui. A situação onde $E_B = 0$ é mostrada em (a) e onde $E_B \neq 0$ em (b). O efeito Hidrogênio isoladamente é apresentado em (c). Em (d) ambos os efeitos são considerados.

Baseando-se nisso e assumindo que o efeito do H seria diminuir a barreira para a difusão realizamos a diminuição da barreira exatamente no canto (figura C.1(c)) por uma quantidade $|E_H|$. Essa alteração também pode ser imaginada como se tivéssemos, justamente no canto do degrau, uma interação mais fraca do átomo com a superfície, ou seja, teríamos um novo valor de E'_S ($E'_S < E_S$). Essa diminuição (efeito Hidrogênio - EH) seria a forma simplificada da possível interação do H no modelo de uma espécie adotado aqui. Essa mudança resulta diretamente num aumento da incorporação nos degraus uma vez que o movimento para o terraço inferior (mínimo local) é facilitado.

Como no nosso caso o efeito Ehrlich-Schwoebel é representado pela presença de E_B , podemos incluir simultaneamente os dois efeitos (Ehrlich-Schwoebel e Hidrogênio) na simulação. Essa situação é mostrada na figura C.1(d). Podemos então verificar se o efeito Hidrogênio pode diminuir o efeito Ehrlich-Schwoebel.

C.3 Resultados

Para verificar os papéis i.) e ii.) do hidrogênio realizamos inicialmente simulações no caso unidimensional (1D). Isso nos permitiu trabalhar com perfis iniciais, como o da figura C.2, de tamanho próximo aos encontrados experimentalmente. Além disso pudemos analisar a influência da grande densidade de degraus na região dos vales.

Para as simulações 1D, o pré-fator k_0 foi alterado para $k_0^{1D} = k_B T / h$ para obedecer o teorema de equipartição de energia.

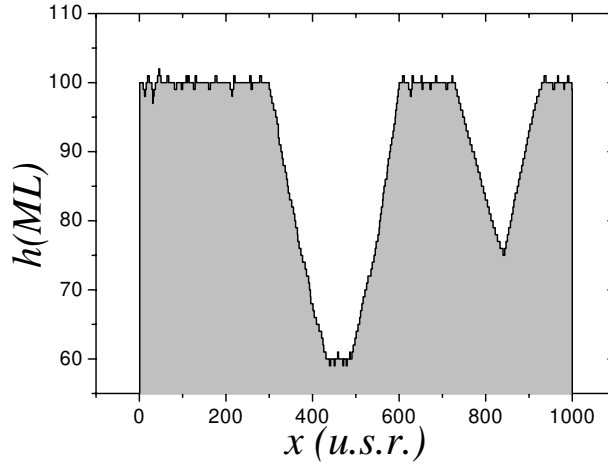


Figura C.2: Perfil inicial usado na simulação com a presença de vales. Esse perfil foi baseado em seções transversais obtidas da morfologia de substratos encontrados experimentalmente [36].

O primeiro resultado é apresentado na figura C.3. Comparamos a evolução temporal da rugosidade numa situação instável ($E_B \neq 0$) para os casos de presença ou não do EH em simulações sobre o perfil da figura C.2.

Nota-se que o EH leva ao processo de planarização e a consequente estabilidade da rugosidade num crescimento instável, diminuindo assim o efeito gerado pela barreira Schwoebel.

Essa planarização também pode ser observada na figura C.4 pela análise das morfologias resultantes para as situações apresentadas na figura C.1. Podemos notar que, para o perfil e para o tempo de simulação considerados, necessitamos incluir o EH para observarmos a planarização do perfil inicial.

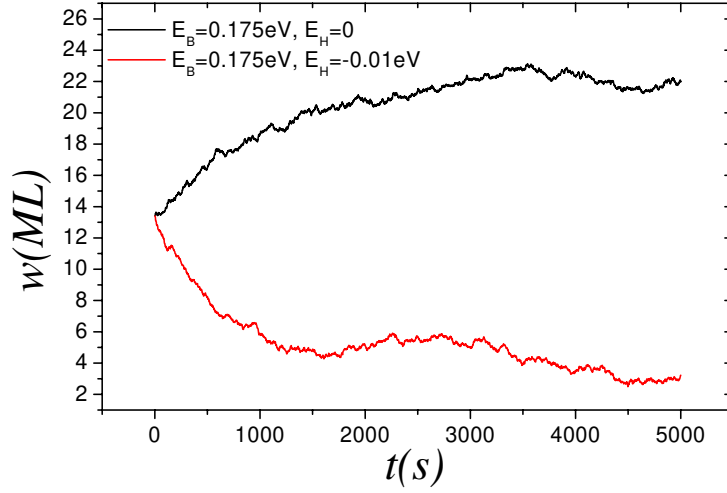


Figura C.3: Evolução temporal da função rugosidade para o caso unidimensional para um crescimento sobre o perfil mostrado na figura C.2. Os parâmetros de crescimento usados foram $T = 480^\circ\text{C}$, $F = 1\text{ ML/s}$, $E_{LIG} = 0.23\text{ eV}$ e $E_S = 1.54\text{ eV}$.

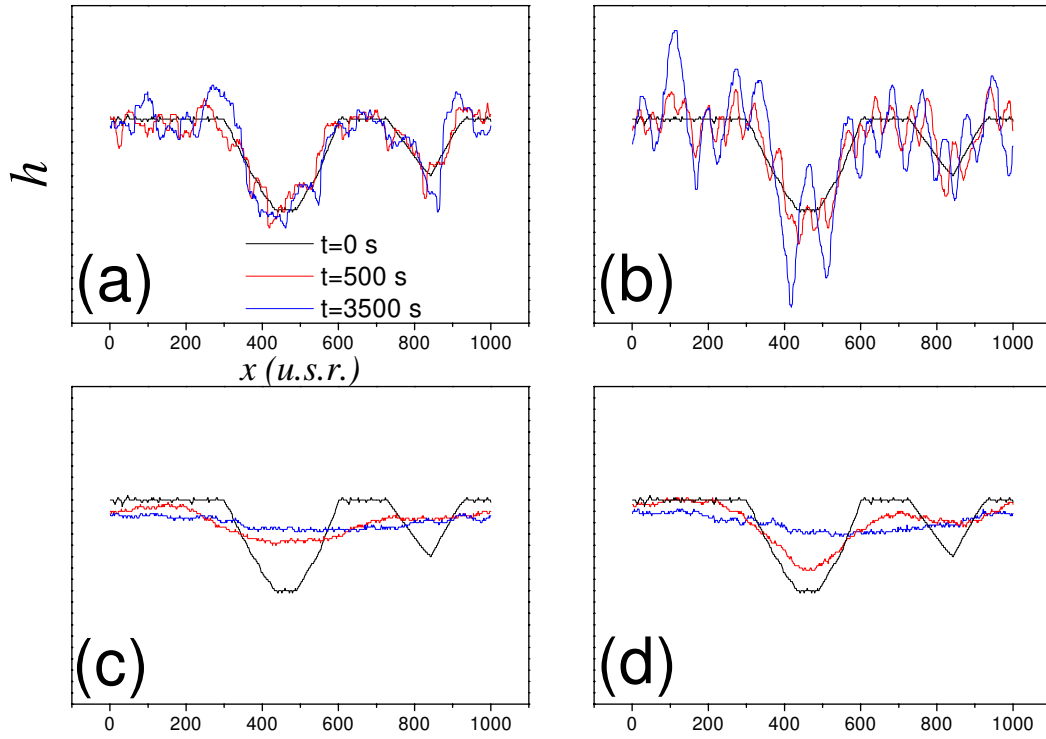


Figura C.4: Evolução da interface do filme crescido para os casos: (a) $E_B = 0$ e $E_H = 0$, (b) $E_B = 0.175\text{ eV}$ e $E_H = 0$, (c) $E_B = 0$ e $E_H = -0.01\text{ eV}$ e (d) $E_B = 0.175\text{ eV}$ e $E_H = -0.01\text{ eV}$. O perfil inicial é o da figura C.2. Notem a presença de *mounds* na situação (b). Os parâmetros usados foram $F = 1\text{ ML/s}$, $T = 480^\circ\text{C}$, $E_{LIG} = 0.23\text{ eV}$ e $E_S = 1.54\text{ eV}$.

O comportamento da corrente espacial J em função do tempo é apresentado na figura C.5 (a,b,c). A corrente J foi obtida calculando o número de átomos que saem e que entram em regiões consecutivas de tamanho l_J (no nosso caso $l_J = 50$ u.s.r.) por unidade de tempo. Essas regiões são mostradas na figura C.5(d) separadas pelas linhas pontilhadas. Quando $J > 0$ para uma região, o movimento resultante dos átomos nela é para a direita e, quando $J < 0$ o movimento é para a esquerda.

Vemos que quando o EH não está presente (figuras C.5 (a) e (b)), J mostra um comportamento sem um padrão característico relacionado com a presença dos vales. Já quando a simulação apresenta o EH vemos uma seqüência de padrões definidos de corrente, os quais levam a uma interpretação física representada na figura C.5(d).

As setas vermelhas indicam o movimento preferencial nas regiões dos vales obtido da análise de J do gráfico da figura C.5(c). Esse movimento preferencial gerado pelo EH propicia uma planarização mais rápida. Assim como a diminuição na barreira para transpor o canto do degrau levou a uma maior incorporação neste, num nível microscópico, o EH associado à grande densidade de degraus levou a uma planarização mais rápida dos vales, num nível macroscópico.

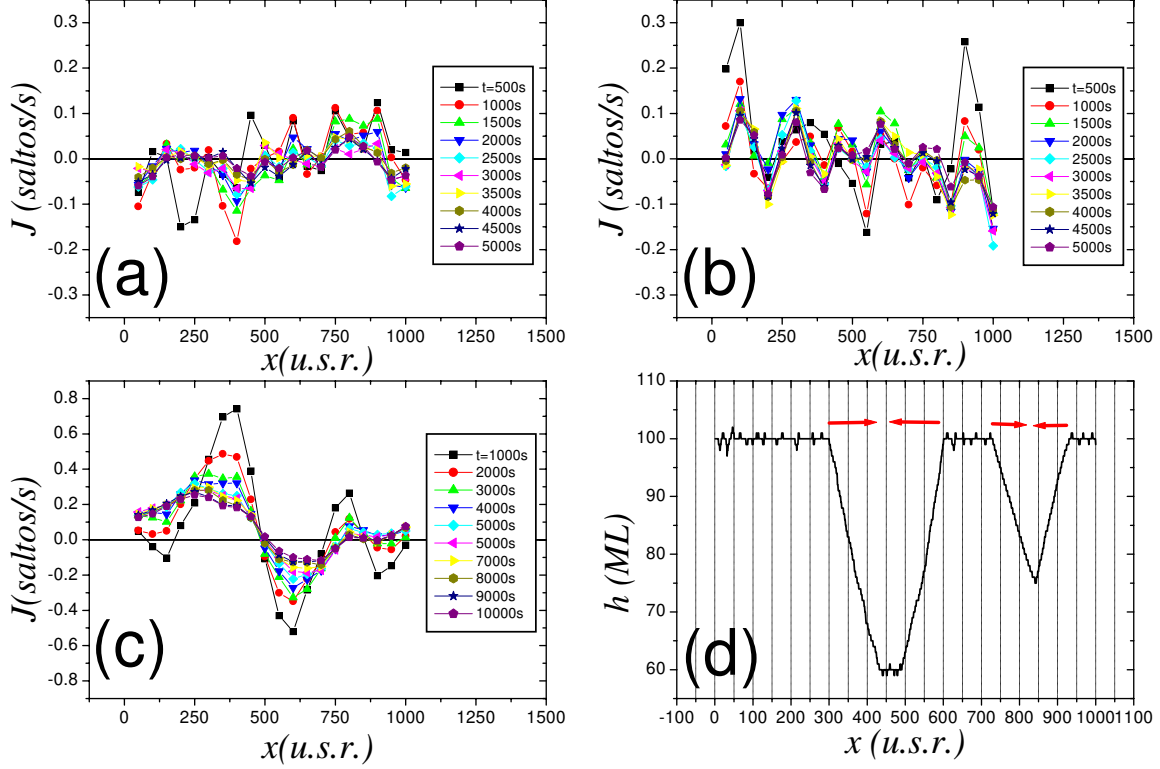


Figura C.5: Evolução temporal da corrente J para os casos onde (a) $E_B = 0$ e $E_H = 0$, (b) $E_B = 0.175 \text{ eV}$ e $E_H = 0$ e (c) $E_B = 0.175 \text{ eV}$ e $E_H = -0.01 \text{ eV}$. Cada ponto nesses gráficos corresponde ao valor da corrente para uma região de 50 sítios. O perfil inicial é mostrado em (d) onde as setas vermelhas indicam o sentido do movimento dos átomos para a situação (c). Os parâmetros usados foram $F = 1 \text{ ML/s}$, $T = 480^\circ \text{C}$, $E_{LIG} = 0.23 \text{ eV}$ e $E_S = 1.54 \text{ eV}$.

A evolução da morfologia durante os estágios iniciais da planarização para o caso da figura C.4 (d) é mostrada na figura C.6. Podemos observar o processo de saída de material da região de interseção entre a parte plana e o vale para o fundo do vale. Este processo é gerado pelo movimento preferencial indicado na figura C.5 (d).

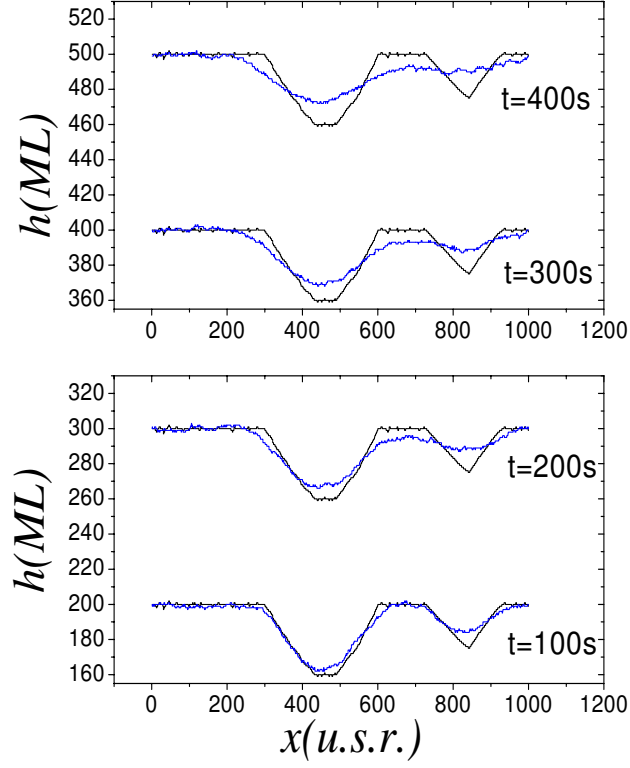


Figura C.6: Evolução da morfologia nas fases iniciais da planarização. O perfil inicial (em preto) é apresentado para comparação. Os parâmetros usados foram $F = 1ML/s$, $T = 480^\circ C$, $E_{LIG} = 0.23eV$, $E_S = 1.54eV$, $E_B = 0.175eV$ e $E_H = -0.01eV$.

O comportamento da rugosidade para um crescimento em duas dimensões é apresentado na figura C.7. Vemos novamente que a planarização é acelerada na presença do EH. Quando apenas esse efeito é acrescentado à simulação observamos um modo de crescimento 2D perfeito, o que pode ser verificado pelas oscilações não amortecidas apresentadas no gráfico interno da figura C.7. Isso indica o aumento da incorporação nos degraus que gera superfícies mais planas.

Vimos portanto, que a alteração no modelo, através da diminuição da barreira para transpor o canto do degrau, nos possibilitou observar um aumento da incorporação dos átomos nos degraus e a diminuição do efeito Ehrlich-Schwoebel.

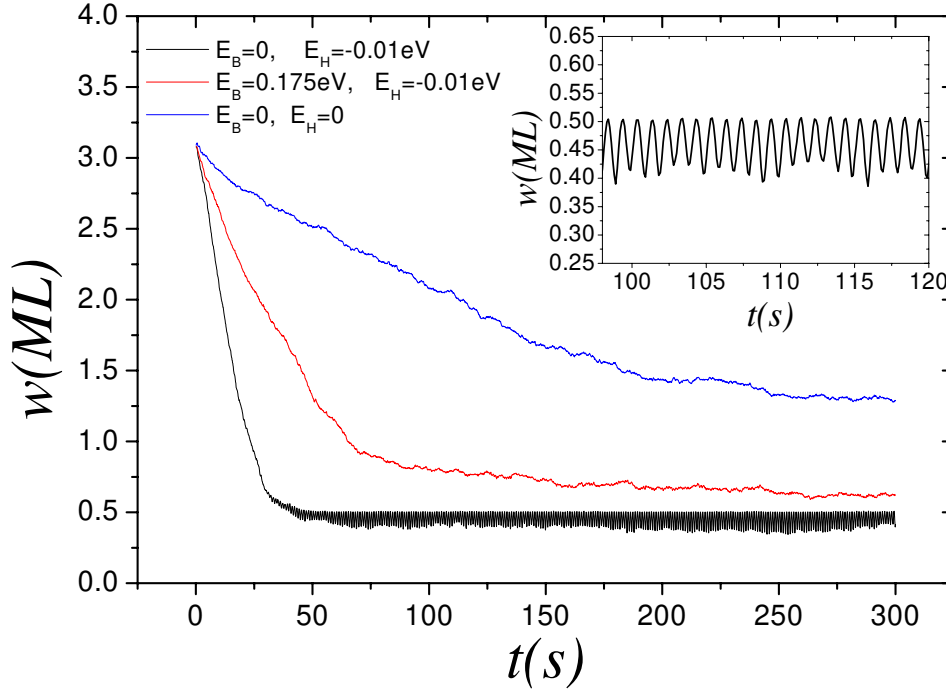


Figura C.7: Evolução da função rugosidade para o caso bidimensional. O crescimento foi realizado sobre a superfície mostrada na figura 3.20 (b). Os parâmetros usados foram $F = 1 ML/s$, $T = 480^\circ C$, $E_{LIG} = 0.23 eV$ e $E_S = 1.54 eV$. O gráfico interno mostra uma ampliação para curva de $E_B = 0$ e $E_H = -0.01 eV$.

No entanto, para confirmarmos as hipóteses levantadas sobre o efeito causado pelo hidrogênio nas vizinhanças do degrau e o tipo de interação desse átomo com a superfície seria necessário analisarmos novos resultados experimentais.. Esses resultados poderiam permitir, por exemplo, observar como seria a variação da morfologia com a mudança do fluxo de AsH_3 , ou com a inclusão intencional de H na câmara de crescimento. Isso alteraria a concentração de H na superfície podendo levar a um efeito mais pronunciado.

Juntamente com novos dados experimentais, uma abordagem teórica - ou através de cálculos *ab initio* de configurações ou mesmo de inclusões de novas formas do efeito do H num modelo de uma espécie - poderia vir a completar o estudo desse problema que ainda permanece não resolvido.

Apêndice D

Lista de publicações

Nesse apêndice apresentamos os trabalhos associados aos resultados discutidos nesta tese.

Trabalhos apresentados em congressos

- 1.) 8th *Brazilian Workshop on Semiconductor Physics* - Águas de Lindóia-SP , 2 a 7 de Fevereiro de 1997: *Mounds in GaAs homoepitaxy: Formation and Evolution* - M.A.Cotta, V.R.Coluci, K.M.Ito-Landers, C.A.C.Mendonça e M.M.G.Carvalho.
- 2.) *Materials Research Society Spring Meeting* - San Francisco, California-USA, 31 de Março a 4 de Abril de 1997 : *Mounds in GaAs homoepitaxy: Formation and Evolution* - M.A.Cotta, V.R.Coluci, K.M.Ito-Landers, C.A.C.Mendonça e M.M.G.Carvalho.
- 3.) XXI Encontro Nacional de Física da Matéria Condensada - Caxambu-MG, 2 a 6 de Junho de 1998 : *Monte Carlo Simulation of dynamical roughening and interface formation in Molecular Beam Epitaxy* - V.R.Coluci e M.A.Cotta
- 4.) 9th *Brazilian Workshop on Semiconductor Physics* - Belo Horizonte-MG , 7 a 12 de Fevereiro de 1999 : *Rough substrates and step-edge barriers: a study with Monte Carlo simulation* - V.R.Coluci e M.A.Cotta.
- 5.) II *Brazilian Meeting of Simulational Physics* - Belo Horizonte-MG , 4 a 6 de Agosto de 1999 : *A systematic study of growth and post-growth processes on rough substrates* - V.R.Coluci e M.A.Cotta.
- 6.) XXIII Encontro Nacional de Física da Matéria Condensada - São Lourenço -MG, 9 a

13 de Maio de 2000 : *Influence of rough substrates on the morphology evolution of epitaxial films* - V.R.Coluci e M.A.Cotta.

Lista de artigos

i.) V.R. Coluci, M.A. Cotta, C.A.C. Mendonça, K.M. Ito-Landers e M.M.G. de Carvalho - “Surface Morphologies in GaAs homoepitaxy: mound formation and evolution.” *Physical Review B*, **58**(4) : 1947-1953 (1998);

ii.) V.R. Coluci, M.A. Cotta e M.M.G. de Carvalho - “Growth of Be-doped homoepitaxial GaAs films on rough substrates.” *Journal of Crystal Growth*, **205** : 36-42 (1999);

iii.) V.R. Coluci e M.A. Cotta - “Influence of rough substrates on the morphology evolution of epitaxial films.” *Physical Review B*, **61**(20) : 13703-13709 (2000).