Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова Сибирского отделения Российской академии наук

На правах рукописи

Казанцев Дмитрий Михайлович

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ТЕРМИЧЕСКОГО ВЫГЛАЖИВАНИЯ И РАЗУПОРЯДОЧЕНИЯ ПОВЕРХНОСТИ ПОЛУПРОВОДНИКОВ

01.04.10 – Физика полупроводников

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:

д.ф.-м.н. В.Л. Альперович

Новосибирск – 2018

Содержание

Список основных сокращений и обозначений 4
Введение
Глава 1. Обзор литературы 12
1.1. Методы описания рельефа поверхности кристалла 12
1.2. Методы получения гладких поверхностей полупроводников 17
1.3. Теория и модели термического выглаживания поверхности
1.4. Микроскопические параметры массопереноса на поверхности
GaAs(001)
1.5. Термическое разупорядочение рельефа поверхности
Постановка задачи 41
Глава 2. Методика
2.1. Методика термического выглаживания поверхности GaAs 44
2.2. Моделирование рельефа исходной шероховатой поверхности 45
2.3. Метод моделирования Монте-Карло и параметры модели 47
Глава 3. Моделирование термического выглаживания поверхности 50
3.1. Кинетика выглаживания шероховатой поверхности 50
3.2. Определение параметров модели для поверхности GaAs(001) 52
3.3. Учет разницы масштабов в моделировании и эксперименте 55
3.4. Учет массопереноса через газовую фазу 56
3.5. Сравнение параметров модели выглаживания поверхности GaAs(001)
с литературными данными
3.6. Определение отклонения условий отжига GaAs от равновесия 61
3.7. Уточнение параметров модели 64
Результаты и выводы к главе 365
Глава 4. Анизотропия рельефа и особенности оствальдовского созревания в
процессе формирования ступенчато-террасированной поверхности

4.1. Пространственное разделение островков и озёр на террасах
4.2. Кристаллографическая и вицинальная анизотропия рельефа 68
4.3. Особенности оствальдовского созревания на ступенчато-
террасированной поверхности79
Результаты и выводы к главе 4
Глава 5. Разупорядочение рельефа ("огрубление") поверхности
5.1. Экспериментальные результаты по разупорядочению рельефа
поверхности GaAs(001)
5.2. Моделирование кинетического разупорядочения
5.3. Особенности огрубления поверхности с разной шириной террас 90
5.4. Оптимизация условий термического выглаживания GaAs(001)93
Результаты и выводы к главе 596
Заключение
Публикации по теме работы 101
Литература 104

Список основных сокращений и обозначений

- АКФ автокорреляционная функция
- АСМ атомно-силовая микроскопия
- ЖФЭ жидкофазная эпитаксия
- МЛЭ молекулярно-лучевая эпитаксия

MOCVD – эпитаксия из металлоорганических соединений

МС – монослой

ФО – Фурье-образ

a = 0.28 нм – высота атомных ступеней на поверхности GaAs(001)

$$a_0 = 0.4$$
 нм – постоянная решетки нереконструированной поверхности GaAs(001)

- *d* средний диаметр островков
- *E*_b энергия латеральных связей

*E*_d – энергия активации диффузии

- *E*_{des} энергия десорбции адатомов
- *E*_S барьер Швёбеля
- *L* средняя ширина террас
- *L*_i длина "залива" при обтекании ступени вокруг центра торможения
- λ корреляционная длина рельефа
- *l*_s безразмерная длина ступеней
- *l*_s^{eq} равновесная безразмерная длина ступеней
- *N* отношение ширины террас в эксперименте и в моделировании
- $\rho_{\rm rms}$ среднеквадратичная шероховатость
- *θ* угол разориентации поверхности
- *t* время отжига
- *t*_s время выглаживания поверхности
- *Т* температура отжига
- *T*_c температура конгруэнтного испарения
- *T*_m температура плавления
- *T*_R температура огрубляющего перехода
- *V* поток вещества на поверхность (MC/c)
- ΔV отклонение потока на поверхность от равновесного значения

Введение

Атомно-гладкие поверхности полупроводников необходимы ЛЛЯ фундаментальных исследований поверхностных процессов [1,2,3,4]И создания полупроводниковых приборов [5]. Только на гладких поверхностях возможно воспроизводимое создание наноструктур с использованием явлений самоорганизации при росте кристаллов [6,7] или современных методов зондовой микроскопии [8,9]. Хорошо известно, что поверхности кремния с регулярными атомно-гладкими террасами, разделенными прямолинейными моноатомными ступенями, можно получить отжигом в вакууме [10,11]. Ширина террас определяется углом отклонения поверхности от сингулярной грани. Для выглаживания полупроводниковых соединений А^ШВ^V отжиг в вакууме не подходит из-за нарушения стехиометрии поверхности при высоких температурах за счет большей летучести элемента V группы [12]. В работах [13,14] был разработан метод получения ступенчато-террасированных поверхностей GaAs отжигом "epi-ready" подложек в условиях, близких к равновесию между поверхностью и парами мышьяка и галлия, когда нет ни сублимации, ни роста. Этот метод оказался менее затратным и более эффективным по сравнению с экспериментами по термическому выглаживанию GaAs в установках молекулярно-лучевой эпитаксии [15] и эпитаксии из металлорганических соединений [16].

К началу выполнения данной работы возможность выглаживания поверхности GaAs была показана экспериментально, И механизмы [13, 14],выглаживания на качественном уровне поняты однако количественное описание процесса формирования ступенчатотеррасированной поверхности отсутствовало. Такое теоретическое описание необходимо для выяснения вкладов отдельных микроскопических механизмов выглаживания на различных этапах формирования ступенчатотеррасированной поверхности, определения параметров модели,

предсказания результатов экспериментов при различных условиях отжига и с различными значениями шероховатости исходной поверхности и, таким образом, оптимизации условий термического выглаживания.

Оставались невыясненными также механизмы разупорядочения рельефа ("огрубления") поверхности GaAs, которое наблюдается В эксперименте при высоких температурах $T \ge 700^{\circ}$ С и состоит в разрушении ступенчато-террасированной морфологии за счет искривления формы ступеней, образования высоких и глубоких "мультислойных" островков и озёр, а также эшелонов ступеней [13,14]. Разупорядочение может быть "огрубляющим термодинамическим переходом" ("roughening вызвано transition"), когда линейное натяжение атомных ступеней уменьшается до нуля из-за энтропийного вклада в свободную энергию поверхности, и образование новых ступеней становится энергетически выгодным [17,18]. Разупорядочение поверхности может быть также связано с кинетическими неустойчивостями, которые возникают из-за отклонения условий отжига от равновесия. Вопрос о механизмах разупорядочения рельефа поверхности при высоких температурах представляет не только научный, но и практический интерес, поскольку увеличение температуры способствует отжига эффективному массопереносу на поверхности и, как следствие, уменьшению длительности выглаживания. Однако температура отжига ограничена сверху огрублением поверхности.

В настоящее время адекватной аналитической теории выглаживания и разупорядочения поверхности кристаллов нет, поэтому описание экспериментов целесообразно проводить с помощью численных методов. Одним из эффективных методов описания процессов массопереноса на поверхности является метод моделирования Монте-Карло. Этот метод широко используется для изучения эволюции рельефа поверхности при росте кристаллов [19,20,21,22,23].

Цель данной работы заключалась в выяснении механизмов термического выглаживания и разупорядочения поверхностей GaAs с помощью метода моделирования Монте-Карло и сопоставления результатов моделирования с экспериментом, определении параметров модели и оптимизации условий выглаживания.

Для достижения поставленной цели в данной работе решались следующие основные задачи:

1. Описать процесс формирования ступенчато-террасированной поверхности GaAs(001) при отжиге методом Монте-Карло в модели кристалла Косселя и найти параметры модели, определяющие процесс выглаживания.

2. Проанализировать экспериментальные данные по выглаживанию поверхности с литографической меткой для определения величины отклонения условий отжига GaAs от равновесия.

3. Выявить кристаллографическую анизотропию рельефа поверхности GaAs(001) в процессе выглаживания.

4. Изучить особенности оствальдовского созревания островков и озёр на ступенчато-террасированной поверхности.

5. Установить причины и выяснить микроскопические механизмы разупорядочения рельефа поверхности GaAs(001) при высоких температурах $T \ge 700^{\circ}$ C.

6. Объяснить особенности разупорядочения рельефа ступенчатотеррасированных поверхностей GaAs(001) с различной шириной террас.

7. Оптимизировать условия (уменьшить длительность) выглаживания поверхностей GaAs с учетом ограничений, налагаемых процессами разупорядочения рельефа поверхности при высоких температурах.

Методология и методы исследования:

Для решения поставленных задач использовалось моделирование термического выглаживания и разупорядочения поверхности кристаллов

методом Монте-Карло. Параметры модели определялись из сопоставления с экспериментом кинетики длины ступеней И размеров островков. Анизотропия рельефа и особенности оствальдовского созревания в процессе ступенчато-террасированной поверхности формирования изучались С автокорреляционного Фурье-анализа. Эти помощью И методы использовались для качественного и количественного анализа ранее экспериментальных результатов термическому полученных ПО выглаживанию и разупорядочению рельефа поверхности GaAs(001) в условиях, близких к равновесию с парами Ga и As.

Научная новизна полученных результатов состоит в следующем:

1. Из сопоставления результатов моделирования с экспериментом на GaAs(001), найдены параметры, определяющие процесс выглаживания полупроводника в условиях, близких к равновесным.

2. С помощью Фурье- и автокорреляционного анализа выявлена кристаллографическая анизотропия рельефа поверхности, а также анизотропия, задаваемая направлением вицинальных ступеней.

3. Выявлены особенности оствальдовского созревания на ступенчатотеррасированной поверхности, связанные с пространственным разделением островков и озёр вицинальными ступенями, а также со встраиванием островков и озёр в ступени.

4. Показано, что образование мультислойных островков и озёр при огрублении поверхности обусловлено обтеканием движущимися ступенями центров торможения при сублимации или росте, соответственно.

Практическая ценность работы:

1. Определены эффективные параметры модели кристалла Косселя, определяющие процесс выглаживания поверхности GaAs(001): энергии латеральных связей, активации диффузии и десорбции атомов. Эти параметры могут быть использованы для оптимизации, с помощью

моделирования Монте-Карло, условий выглаживания поверхностей с различной исходной шероховатостью.

2. C помощью моделирования Монте-Карло И сопоставления результатов моделирования с экспериментом показано, что огрубление поверхности при повышенных температурах отжига $T \ge 700^{\circ}$ C вызвано равновесия. Предложен отклонением условий отжига ОТ механизм формирования мультислойных островков и озёр, а также эшелонов ступеней.

3. Найдены оптимальные условия получения ступенчатотеррасированных поверхностей GaAs(001) с помощью двухэтапного отжига при относительно высокой и низкой температурах на первом и втором этапах, соответственно.

На защиту выносятся следующие положения:

1. Моделирование Монте-Карло в модели кристалла Косселя позволяет описать процесс формирования ступенчато-террасированной поверхности GaAs(001), найти значения эффективных параметров, определяющих этот процесс, и выявить кристаллографическую анизотропию поверхности в процессе термического выглаживания.

2. На ступенчато-террасированной поверхности пространственное разделение островков и озёр, расположенных вблизи вицинальных ступеней, на ниже- и вышележащих террасах, соответственно, препятствует их рекомбинации. Оствальдовское созревание островков и озёр сменяется уменьшением их среднего размера за счет встраивания в ступени.

3. Кинетическое огрубление поверхности GaAs(001) при отклонении условий отжига от равновесия обусловлено обтеканием движущимися вицинальными ступенями участков поверхности, на которых рост и сублимация подавлены.

Степень достоверности полученных результатов обеспечивается применением апробированных программ для моделирования методом Монте-Карло, накоплением необходимой статистики при одинаковых

начальных условиях для корректной оценки степени воспроизводимости и точности моделирования, сопоставлением с экспериментальными данными и анализом результатов этого сопоставления, а также сравнением с работами других авторов.

Апробация работы:

Полученные результаты работы были представлены на Международных симпозиумах "Наноструктуры: физика и технология" (Санкт-Петербург, 2013, 2017), Российских конференциях по физике полупроводников (Санкт-Петербург, 2013, Звенигород, 2015, Екатеринбург, 2017), Международных симпозиумах "Нанофизика и наноэлектроника" (Нижний Новгород, 2014, 2015, 2016), Международной конференции по физике полупроводников (Монпелье, Франция, 2018), научных семинарах ИФП СО РАН. По результатам данной работы опубликовано 16 работ [А1– А16].

Объем и структура работы. Работа состоит из введения, пяти глав, заключения и списка литературы.

В первой главе рассмотрены методы описания рельефа поверхности кристаллов, известные из литературы экспериментальные данные по получению гладких поверхностей полупроводников, способы теоретического описания выглаживания поверхности. Приведены значения микроскопических параметров массопереноса на поверхности GaAs(001). Обсуждаются возможные механизмы огрубления поверхности при высоких температурах. В конце главы сформулированы задачи данной работы.

Во второй главе изложена методика проведенных ранее экспериментов по термическому выглаживанию поверхности GaAs(001) и детально описаны использованные в данной работе методы задания исходной шероховатой поверхности и моделирования Монте-Карло. Обсуждаются вопросы применимости однокомпонентной модели для моделирования двухкомпонентного полупроводника. В третьей главе приведены результаты описания экспериментов по термическому выглаживанию GaAs(001) с помощью моделирования Монте-Карло. Проведен качественный анализ микроскопических механизмов выглаживания поверхности. Из аппроксимации моделированием измеренных ранее, в эксперименте по выглаживанию GaAs(001), кинетики длины ступеней и среднего размера островков и озёр определены параметры модели. Эти параметры сопоставлены с известными из литературы значениями. Для определения близости условий отжига к равновесным по смещению атомных ступеней, проведен анализ результатов эксперимента по выглаживанию поверхности GaAs(001) с литографической меткой.

В четвертой главе обсуждается анизотропия рельефа поверхности в процессе формирования ступенчато-террасированной морфологии и особенности оствальдовского созревания островков на вицинальной поверхности. В начале главы рассмотрено пространственное разделение островков и озёр по разные стороны формирующихся вицинальных ступеней, которое препятствует их рекомбинации.

В пятой главе приведены экспериментальные данные [13,14], свидетельствующие от том, что разупорядочение рельефа поверхности GaAs(001) при высокотемпературных отжигах связано с кинетическими неустойчивостями из-за отклонения условий отжига от равновесия в сторону сублимации Приведено объяснение или роста. качественное И описание моделированием Монте-Карло количественное процесса образования мультислойных островков и озёр при огрублении поверхности. Изучено разупорядочение рельефа вицинальных поверхностей с разной исходной шириной террас. В заключительный части главы проведена оптимизация условий выглаживания с учетом высокотемпературного огрубления поверхности.

В заключении приведены основные результаты и выводы диссертационной работы.

Глава 1. Обзор литературы

В данной главе рассмотрены методы описания рельефа поверхности кристаллов (п. 1.1), известные из литературы экспериментальные данные по получению гладких поверхностей полупроводников (п. 1.2), способы теоретического описания выглаживания поверхности (п. 1.3). В п. 1.4 приведены значения микроскопических параметров массопереноса на поверхности GaAs(001). Возможные механизмы огрубления поверхности при высоких температурах обсуждаются в п. 1.5. В конце главы сформулированы задачи данной работы.

1.1. Методы описания рельефа поверхности кристалла

Понятие о гладкости поверхности определяется областью применения и методами измерения рельефа поверхности. С точки зрения оптических применений и методов измерения, гладкими могут считаться поверхности с характерными размерами шероховатостей много меньшими длины волны света. Следует отметить, что методы интерференционной микроскопии позволяют обнаружить шероховатости с высотой, сравнимой с межатомным расстоянием, то есть много меньше длины волны, но с латеральными сравнимыми с длиной волны. размерами, Данная работа посвящена описанию экспериментов [13,14] формированию по ступенчатотеррасированной поверхности с атомно-гладкими террасами, рельеф которых измерялся с помощью атомно-силового микроскопа. Используемый в [13,14] атомно-силовой микроскоп позволяет разрешить шероховатости высотой в один монослой, в то время как латеральное разрешение составляет 10 – 20 нм, что много больше межатомного расстояния и размера элементарной ячейки реконструированной поверхности. Измеренные с таким разрешением атомно-гладкие поверхности могут быть шероховатыми на атомном уровне. Как известно, атомные реконструкции поверхности могут захватываты

несколько (два и более) атомных слоев [24,25,26], поэтому рельеф реконструированной поверхности, измеренный с атомным разрешением (в частности, методом сканирующей туннельной микроскопии), содержит периодические перепады высоты таких размеров, определяющиеся конкретным устройством поверхностной элементарной ячейки.

При измерении той же поверхности атомно-силовым микроскопом изображение рельефа отдельной террасы может оказаться атомарно-гладким, с величиной среднеквадратичной шероховатости меньшей межатомного расстояния, поскольку реконструкционные "шероховатости" атомного масштаба усредняются на размере латерального разрешения ~ 10 – 20 нм. В данной работе проводится описание экспериментальных данных по эволюции рельефа поверхностей GaAs(001), измеренных методом атомносиловой микроскопии [13,14], поэтому "шероховатости" атомного масштаба, связанные с атомными реконструкциями, не учитываются.

Наиболее гладкая поверхность, которую можно получить – это сингулярная грань кристалла при низкой температуре [18,27]. При повышении температуры, выход атомов из поверхностного слоя приводит к образованию адатомов и вакансий. Такая поверхность называется атомногладкой. Если поверхность отклонена от сингулярной грани, в лучшем случае она представляет собой регулярные атомно-гладкие террасы, разделенные ступенями моноатомной высоты а. Ширина террас L определяется углом разориентации поверхности от сингулярной грани θ : $\theta = tg(L/a)$. В свою очередь, атомные ступени остаются прямолинейными, только если они направлены вдоль сингулярного направления и только при низкой температуре. Ступень, отклоненная ОТ сингулярного направления, представляет собой ломанную линию. С ростом температуры К "геометрическим" изломам ступени добавляются "термические" [28,29,30].

Поверхности реальных кристаллов, как правило, не гладкие, а шероховатые. Обзор методов описания рельефа поверхностей приведен в

работах [31,32]. Для оценки степени шероховатости поверхности обычно используется величина среднеквадратичной шероховатости, т.е. среднеквадратичное отклонение высоты поверхности $h(\vec{r})$ от среднего $\rho_{rms} = \sqrt{\langle h^2(\vec{r}) \rangle_{\vec{r}}}$. Среднеквадратичная шероховатость значения: поверхности характеризует высоту шероховатостей, но не их латеральные Среднеквадратичная шероховатость идеальной ступенчаторазмеры. террасированной поверхности равна $\rho_{rms} = a/2\sqrt{3} \approx a/3.5$, где a – высота вицинальных ступеней. Для поверхности GaAs(001) с высотой ступеней $a \approx 0.28$ нм эта величина составляет $\rho_0 \approx 0.08$ нм.

Для более детального описания рельефа поверхности используется двумерная автокорреляционная функция (АКФ) высоты поверхности $h(\vec{r})$: $f(\vec{r}) = \langle h(\vec{r}_0)h(\vec{r}_0 + \vec{r}) \rangle_{\vec{r}_0}$. Квадрат среднеквадратичной шероховатости поверхности равен значению автокорреляционной функции при $\vec{r} = 0$: $f(0) = \langle h^2(\vec{r}_0) \rangle_{\vec{r}_0} = \rho_{rms}^2$. Чтобы дополнить описание рельефа поверхности, среднеквадратичной шероховатостью наряду используется co корреляционная длина, которая показывает характерный латеральный размер Для определения неровностей рельефа. корреляционной длины λ, автокорреляционная функция рельефа поверхности, усредненная по вектора \vec{r} . аппроксимируется функцией направлению **Faycca** $f(r) \approx f(0) \exp(-r^2 / \lambda^2)$ [31,32]. Следует отметить, ЧТО определение корреляционной длины неоднозначно. Например, в работе [33] показано, что АКФ рельефа гетерограницы Si(100)/SiO₂ ближе к экспоненциальной $f(r) \approx f(0) \exp(-r/\lambda)$, чем к функции функции Γaycca. Наконец, корреляционную длину можно определить без привязки к точной форме АКФ, как расстояние, на котором величина АКФ уменьшается в *n* раз: $f(\lambda)/f(0) \approx n$. Если построить симметричный график АКФ в интервале

 $-\infty < r < \infty$, для n = 2 такое определение совпадает с полушириной на полувысоте пика в центре графика АКФ.

Для анализа спектра пространственных частот рельефа поверхности используется двумерное преобразование Фурье высоты поверхности $h(\vec{r})$:

$$h(\vec{k}) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} h(\vec{r}) e^{-i\vec{k}\vec{r}} d\vec{r}$$
. Квадрат модуля Фурье-образа рельефа $|h(k)|^2$ или,

что то же самое, Фурье-образ автокорреляционной функции, усредненный по направлению, называется спектральной плотностью мощности (power spectral density, PSD) [31,32,34]. Спектральная плотность мощности описывает распределение неровностей поверхности по длине волны и обычно используется для определения качества оптических поверхностей – зеркал и линз. Применение этого величины в оптике обусловлено тем, что угловая зависимость рассеяния света на поверхности непосредственно выражается через спектральную плотность мощности шероховатостей. Кроме того, принято считать, что спектральная плотность мощности меньше зависит от условий измерения, чем среднеквадратичная шероховатость или корреляционная длина поверхности [34].

Для "холмистых" поверхностей, покрытых выступами ("mounds"), корреляционная длина определяется латеральными размерами выступов [32]. На двумерных АКФ и Фурье-образе рельефа поверхности появляется кольцо вокруг центра, радиус которого соответствует среднему расстоянию между выступами *L*. На сечении АКФ или Фурье-образа может присутствовать несколько боковых пиков, соответствующих кратному расстоянию между выступами *nL*. Однако интенсивность пиков с n > 1 мала по сравнению с пиком n = 1, и на полутоновом изображении АКФ или Фурье-образа их, как правило, не видно из-за зернистой структуры колец. Происхождение "зернистости" ранее не обсуждалось. В случае анизотропной формы

выступов или анизотропии расстояния между ними, корреляционная длина или радиус кольца, соответственно, зависит от направления.

В работе [14] автокорреляционный и Фурье-анализ впервые применены для описания формирующейся ступенчато-террасированной поверхности GaAs(001) при отжиге при T = 625°C. На Фурье-образе рельефа поверхности пара пиков, соответствующая периодичности вицинальных ступеней, окружена "гало". Анизотропия гало объяснена анизотропией ориентации отрезков ступеней, которая, в свою очередь, вызвана анизотропией поверхностной диффузии и встраивания атомов в ступени. В результате отжига, гало сужается в 4-5 раз, что иллюстрирует выглаживание шероховатостей с малыми латеральными размерами. На изображениях АКФ формируется рельефа поверхности ряд параллельных полос, соответствующих направлению вицинальных ступеней и ширине террас. Рост корреляционной длины в направлении вдоль ступеней на порядок указывает на увеличение периода неровностей ступеней при выглаживании. В то же среднеквадратичная шероховатость поверхности, время определяющая амплитуду центрального пика АКФ, уменьшается всего в 1.5-2 раза. Это связано с тем, что для выглаживания использовались подложки с малой исходной величиной среднеквадратичной шероховатости, близкой к пределу для идеальной ступенчато-террасированной поверхности ρ_0 .

В работе [12] в качестве характеристики рельефа ступенчатотеррасированной поверхности предложено использовать "относительную площадь поверхности" $s_{rel} = (S_{3D} - 1)/S_{2D}$, где S_{3D} – полная площадь поверхности, включая боковые грани островков и террас, а S_{2D} – площадь горизонтальных участков поверхности. Если все ступени имеют одинаковую высоту, данная величина совпадает, с точностью до нормировки на высоту ступеней, с суммарной длиной ступеней. В работе [13,14] эта идея была развита, и использовалась суммарная длина вицинальных ступеней и

периметра островков, нормированная на длину прямолинейных ступеней на террасированной поверхности с той же шириной террас. Длине ступеней можно придать ясный физический смысл, поскольку вклад ступеней в свободную энергию поверхности пропорционален их длине. Как и среднеквадратичная шероховатость, полная длина ступеней ограничена снизу из-за наличия вицинальных ступеней на поверхности. Однако длина ступеней более чувствительна, чем среднеквадратичная шероховатость, к образованию островков и искривлению формы вицинальных ступеней. При выглаживании поверхности GaAs(001) длина ступеней уменьшается на 1.5 – 2 порядка, а среднеквадратичная шероховатость – всего в 1.5 – 2 раза. Поэтому длина ступеней лучше, чем среднеквадратичная шероховатость, подходит для описания кинетики выглаживания поверхностей с малой исходной величиной среднеквадратичной шероховатости, меньшей или сравнимой с высотой ступеней [13,14].

1.2. Методы получения гладких поверхностей полупроводников

1.2.1. Химико-механическое полирование

Полупроводниковые пластины, используемые в промышленности и для научных исследований, шлифуются абразивным материалом и полируются достижения необходимой гладкости. Ha заключительном для этапе полировки, в процессе химико-механического полирования поверхность образовавшиеся пластин окисляется травителем, удаляются оксиды механически [35,36]. После полирования поверхность пластин зеркальной гладкостью низкой величиной характеризуется И среднеквадратичной шероховатости, сравнимой с межатомным расстоянием. Однако механическое воздействие приводит к нарушению структуры ("разупорядочению") приповерхностной области на микроскопическом уровне, с большой концентрацией дефектов и смещенных из положения

кристаллической решетки атомов. Рельеф поверхности после полирования далек от идеальной вицинальной грани кристалла: на поверхности не видны ни гладкие террасы, ни ступени. Наконец, химико-механическое полирование может приводить к загрязнению поверхности углеродом и, в случае составных полупроводников группы $A^{III}B^{V}$, обеднению поверхности одним из компонент (обычно III группы) [35,36].

1.2.2. Отжиг в вакууме

Разупорядоченная поверхность после химико-механического полирования не является термодинамически равновесной. Однако, при комнатной температуре термодинамическое равновесие не может быть достигнуто за разумное время. Структурный беспорядок можно уменьшить и превратить поверхность ступенчато-террасированную В за счет поверхностной диффузии при повышенных температурах. Несмотря на то, что шероховатость равновесной поверхности, как правило, возрастает при увеличении температуры, она может быть меньше, чем шероховатость неравновесной исходной, поверхности. Ступенчато-террасированные поверхности кремния, близкие к идеальным, могут быть получены отжигом в вакууме [10,11]. Нагрев поверхности Si(111) в ультравысоком вакууме до температуры $T = 900 - 1000^{\circ}$ С приводит к удалению оксидов с поверхности и разделенных формированию атомно-гладких террас, моноатомными ступенями, близкими к прямолинейным.

Для GaAs и других полупроводников группы A^{III}B^V отжиг в вакууме не подходит из-за высокой и различной скорости испарения компонентов. Трудно найти такую температуру, при которой поверхностная диффузия уже достаточно эффективна для выглаживания поверхности за экспериментально сублимации допустимое скорость время, но все еще невелика. Неконгруэнтная сублимация поверхности полупроводников приводит к нарушению стехиометрии приповерхностной области И развитию

GaAs(001) неровностей рельефа. Для поверхности температура $T_{\rm c} = 640 - 650^{\circ} {\rm C} [37,38].$ конгруэнтного испарения составляет При температурах выше T_c , давление насыщенных паров и скорость испарения As больше, чем Ga. В результате обеднения поверхности GaAs мышьяком образуются капли жидкого Ga. В зависимости от температуры эти капли поверхности могут двигаться ПО ИЛИ оставаться неподвижными И подтравливать поверхность [39,40,41,42]. При температурах ниже $T_{\rm c}$ давление насыщенных паров Ga больше, чем As. Однако, мышьяк не собирается в капли, а объединяется в молекулы As₂, которые быстрее испаряются с поверхности. Поэтому при температурах ниже Т_с, испарения GaAs является конгруэнтным (скорости испарения мышьяка и галлия совпадают), а поверхность может оставаться гладкой.

1.2.3. Эпитаксиальные методы

Принято считать, что гладкие поверхности полупроводников можно получить с помощью эпитаксиального роста методами молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ), эпитаксии из металлоорганических соединений (МОСVD) и жидкофазной эпитаксии (ЖФЭ). Однако эпитаксиальный рост проводится в условиях, далеких от равновесия, и может приводить к огрублению поверхности из-за развития кинетических неустойчивостей (см. п. 1.5). МЛЭ проводится в наиболее неравновесных условиях, поэтому проблеме получения гладких поверхностей при МЛЭ уделялось большое внимание. Было показано, что для достижения наилучшего качества и гладкости поверхности эпитаксиальный рост нужно проводить при избытке мышьяка в потоке мышьяка, в несколько раз превышающем поток галлия, в условиях, соответствующих реконструкции $\beta 2(2 \ge 4)$ [43,44].

Из эпитаксиальных методов, жидкофазная эпитаксия наиболее близка к равновесным условиям. В работе [45] продемонстрирована возможность получения атомно-гладких террас размером до 0.5 x 0.5 мм на меза-

структурированной поверхности GaAs(001) при эпитаксиальном росте в установке жидкофазной эпитаксии. Рост проводился на подложках с углом разориентации $\theta < 0.05^{\circ}$ и плотностью винтовых дислокаций около 10^3 см⁻², что соответствует средней ширине террас около 0.3 мкм и среднему расстоянию дислокациями порядка 300 мкм. С помощью между фотолитографии на поверхности были изготовлены квадратные мезаструктуры с длиной стороны 500 мкм, разделенные канавками шириной 50 мкм и глубиной 1 мкм. На вершинах меза-структур был выращен слой толщиной 0.4 - 2 мкм при температуре около $T = 715^{\circ}$ С. Для получения гладких поверхностей кристаллов ростовыми методами поверхность должна следующие, отчасти противоречивые свойства: иметь (1)близость поверхности к сингулярной грани кристалла и, следовательно, низкая плотность вицинальных ступеней, (2) наоборот, достаточная для ступенчатослоевого роста плотность ступеней, и (3) устойчивость морфологии поверхности в процессе роста. Использование меза-структурированной поверхности позволило "согнать" вицинальные ступени в канавки, в то время как рост происходил за счет "раскручивания" дислокационных спиралей роста со средним расстоянием между ступенями 5 – 15 мкм. На некоторых меза-структурах не оказалось выходов винтовых дислокаций, и их вершины стали атомно-гладкими.

1.2.4. Термическое выглаживание

Чтобы избежать кинетических нестабильностей, приводящих к развитию рельефа поверхности, выглаживание должно проводиться в условиях, близких к равновесию, когда испарение с поверхности и осаждение из газовой фазы скомпенсированы, и не происходит ни сублимации, ни роста [18]. В работе [15] термическое выглаживание поверхности GaAs(001) проводилось в установке молекулярно-лучевой эпитаксии (MBE) в течение 0.25 - 33 ч при температурах T = 500 - 700°C и эффективном давлении паров

As₄ в потоке 0.01 – 10 мторр. Исследовано влияние давления паров As₄ и температуры на морфологию поверхности GaAs(001). Каждый образец отжигался при фиксированной температуре и давлении до тех пор, пока морфология поверхности не становилась неизменной. Поэтому отжиги при умеренно низкой температуре занимали длительное время, а отжиги при большей температуре требовали меньше времени. Было показано, что отжиг при достаточно высоком давлении паров As₄ и умеренной температуре позволяет получать ступенчато-террасированные поверхности с гладкими террасами. Наоборот, при низком давлении паров As₄ и повышенной "огрубление" температуре происходит поверхности, состоящее В образовании мультислойных островков. Следует отметить, что, строго говоря, эти эксперименты проводились не в равновесных условиях, потому что давление паров Ga при отжиге не контролировалось. Возможно, огрубление поверхности связано не с термодинамическим огрубляющим переходом, как считают авторы [15], а с неконгрузнтным испарением поверхности.

В работе [16] продемонстрирована возможность получения ступенчатотеррасированной поверхности GaAs(001) при отжиге в смеси арсина и водорода в установке газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений (MOCVD). Наличие 1 % арсина в атмосфере водорода при давлении 90 мбар достаточно, чтобы предотвратить обеднение поверхности GaAs мышьяком и развитие неровностей рельефа. Отжиг проводился в диапазоне температур T = 560 - 760°C. Образцы нагревались до заданной температуры с максимально возможной для экспериментальной установки скоростью 2.5°C/с, затем быстро охлаждались, чтобы "заморозить" рельеф поверхности. При мере увеличения температуры отжига наблюдалось образование террас с "грубыми", извилистыми границами, островками и озёрами (622°C), исчезновение островков и озёр и сглаживание границ террас (636°C) и, наконец, полное выпрямление ступеней (760°C). Условия отжига в

МОСVD ближе к равновесию, чем в МЛЭ, но также не являются равновесными. Более того, выглаживание поверхности и уменьшение плотности ступеней объяснено авторами работы [16] как переносом Ga по поверхности, так и испарением Ga с поверхности.

В работе [46] также проводился отжиг поверхности GaAs(001) в установке газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений (MOCVD) в смеси арсина и водорода при давлении 0.1 атм, но вместо выглаживания поверхности наблюдалось формирование ступеней высотой 4-8 монослоев (МС). Отжиг длительностью до 30 мин проводился в диапазоне температур $T = 700 - 800^{\circ}$ C. Образцы нагревались до заданной температуры со скоростью 2.5°C/с, и охлаждались до комнатной температуры со скоростью -1.5°С/с. Чтобы проследить за испарением Ga, которое может приводить к эшелонированию ступеней, использовались два независимых метода. В первом методе с помощью фотолитографии и химического травления на поверхность наносилась маска из SiN_x в виде полос шириной 2 мкм на расстоянии 2 мкм друг от друга. После отжига маска удалялась и глубина, на которую испарилась поверхность, измерялась атомно-силовым микроскопом. Во втором методе на поверхности выращивалась квантовая яма AlGaAs/GaAs/AlGaAs толщиной 4.5 нм. Изменение толщины квантовой ямы GaAs при последующем отжиге оценивалось ПО сдвигу пика фотолюминесценции при 77 К. Было показано, что испарение Ga с поверхности не превышает 1 - 2 MC и, таким образом, не может быть основной причиной эшелонирования ступеней. Эшелонирование ступеней было объяснено перераспределением атомов между ступенями за счет поверхностной диффузии.

Отжиги в установках молекулярно-лучевой эпитаксии или газофазной эпитаксии из металлоорганических соединений очень дороги даже для научных экспериментов, не говоря о практическом применении, и не всегда приводят к выглаживанию поверхности. В работах [13,14] был предложен и

реализован метод термического выглаживания поверхности GaAs(001) в установке жидкофазной эпитаксии при $T = 550 - 700^{\circ}$ С в условиях, близких к равновесию между поверхностью и парами галлия и мышьяка. Этот метод позволяет получать ступенчато-террасированные поверхности GaAs(001) с атомно-гладкими террасами, разделенными моноатомными ступенями, близкими к прямолинейным, но детальное описание микроскопических механизмов выглаживания отсутствует.

Для выяснения условий достижения равновесия в системе Ga-As при термическом выглаживании [13,14], рассмотрим фазовую диаграмму этой системы (рис. 1) [47,37]. На рис. 1 по горизонтали отложена доля As в жидкой и газообразной фазе, по вертикали – температура. Из фазовой диаграммы следует, что в приближении объемных фаз, двухкомпонентная трехфазная система, включающая кристалл GaAs, раствор-расплав Ga-As и пары Ga и As может находиться в равновесии в диапазоне температур от температуры плавления Ga $T_{\rm m}^{\rm Ga} = 29.5^{\circ}{\rm C}$ до температуры плавления GaAs $T_{\rm m} = 1238^{\circ}{\rm C}$. Условия отжига поверхности GaAs(001) в присутствии насыщенного раствора-расплава Ga-As, использованные в работах [13,14], соответствуют галлиевой стороне фазовой диаграммы. Следует отметить, что в приближении объемных фаз не учитываются рельеф и реконструкции поверхности, которые представляют собой дополнительные поверхностные фазы. Это обстоятельство осложняет вопрос о достижении "полного" термодинамического равновесия В системе. Однако ДЛЯ методики термического выглаживания существенным является частичное равновесие, в котором скомпенсированы потоки вещества с поверхности и на поверхность, и нет ни роста, ни сублимации.



Рисунок 1. Фазовая диаграмма системы Ga–As, включающей кристалл GaAs, растворрасплав Ga–As и пары Ga и As. Диапазон температур и состава, соответствующий экспериментам по термическому выглаживанию GaAs [13,14], заштрихован.

В работах [13,14] было показано, что при повышенных температурах отжига $T > 700^{\circ}$ С упорядочение рельефа поверхности сменяется разупорядочением, которое проявляется в искривлении формы ступеней и образовании островков и озёр на террасах. В работе [48] было предложено качественное объяснение образования островов и озёр из-за отклонения условий отжига от равновесия. Согласно этому объяснению, во время роста и сублимации происходит спонтанное формирование моноатомных островков и озёр. Движение вицинальных ступеней при сублимации приводит к

увеличению высоты островков относительно понизившегося уровня террас и стабилизации островков, в то время как озёра исчезают. При росте поверхности, наоборот, озёра становятся стабильными, а островки сливаются с наступающими ступенями. Однако количественного описания этого процесса не было.

К сожалению, в методе, разработанном в [13,14], нет возможности напрямую определять атомную структуру и реконструкции поверхности. Известно, что на поверхности GaAs(001) существует ряд поверхностных реконструкций в зависимости от температуры и соотношения Ga и As в поверхностном слое [24,25,26]. Известно также, что при получении поверхности методами МЛЭ макрорельеф поверхности существенно зависит от реконструкции, при которой проводится рост [43,44]. Из общих соображений ясно, что процессы на поверхности при выглаживании также должны зависеть от реконструкций. Термическое выглаживание поверхности по методу, разработанному в [13,14], проводится на Ga стороне фазовой диаграммы при $T = 550 - 700^{\circ}$ C. При этих условиях поверхность GaAs(001) имеет одну из Ga-обогащенных реконструкций, вероятно, $(4 \times 2)/c(8 \times 2)$ [24,25,26]. Следует также учитывать, что выглаживание проводится в потоке водорода. В атмосфере водорода отсутствует ряд переходных реконструкций между As- и Ga-обогащенной поверхностью из-за усиленного обеднения поверхности мышьяком в результате формирования гидрированного слоя и термической десорбции соединений мышьяка с водородом [49,50,51]. В то же время, реконструкция (4 x 2) наблюдается как при отжигах в вакууме, так и в атмосфере водорода. Таким образом, наиболее вероятно, что в процессе выглаживания поверхность GaAs(001) имеет термического ОДНУ ИЗ высокотемпературных галлиевых реконструкций.

1.3. Теория и модели термического выглаживания поверхности

К настоящему времени хорошо развита теория эпитаксиального роста поверхности полупроводников в модели "терраса-ступень-излом" (terracestep-kink, TSK), основанная на работах Френкеля [28] и Бартона, Кабреры, Франка [29]; обзор этих работ дан в [30]. Атомы адсорбируются на террасе, диффундируют по ней и достигают ступеней. Часть атомов испаряется по пути. "Прилипшие" к ступени атомы диффундируют в потенциальной "канавке" вдоль ступени, пока не встраиваются в излом на ступени [52]. Рост поверхности происходит за счет движения относительно прямолинейных вицинальных ступеней или "раскручивания" спиральных ступеней, порожденных выходами винтовых дислокаций на поверхность. В работе [28] решена задача диффузии атомов по террасе и выведена скорость движения ступеней в зависимости от потоков атомов на поверхность и с поверхности, коэффициента поверхностной диффузии и радиуса кривизны ступеней. Изучено взаимодействие ступеней от близко расположенных винтовых дислокаций. Известна зависимость давления насыщенных паров Ga и As над поверхностью GaAs от температуры [47,38], определяющая поток атомов с поверхности. Изучены процессы зарождения и роста двумерных островков и трехмерных "нанопроволок" на поверхности, и другие неустойчивости при росте и сублимации [53,54,55,56,57]. Однако, все эти теории работают с уже готовыми ступенчато-террасированными поверхностями, но не описывают процесс формирования ступенчато-террасированной морфологии ИЗ исходной шероховатой поверхности.

Выглаживание поверхности соответствует установлению термодинамического равновесия, но при комнатной температуре происходит слишком медленно [18]. Для выглаживания неровностей поверхности нанометрового размера за разумное время (десятки часов) необходима температура порядка 1/3 температуры плавления. Для выглаживания

неровностей размером несколько микрон требуется температура порядка 2/3 температуры плавления. Если поверхность кристалла не огранена (что соответствует огрубляющему переходу, обсуждаемому в п. 1.4), можно разложить рельеф поверхности в спектр пространственных частот, и найти время выглаживания неровностей поверхности с произвольным периодом в Время континуальной модели. выглаживания зависит периода OT неровностей степенным образом, причем показатель степени определяется механизмом выглаживания. Для диффузии атомов по поверхности и переноса через газовую фазу показатель степени составляет 4 и 2, соответственно.

Случай, когда поверхность кристалла огранена, более сложный. Шероховатую поверхность можно представить в виде большого числа моноатомных островков и озёр неправильной формы, расположенных друг на друге. Если на поверхности нет озёр и все островки находятся на одном уровне, можно получить аналитическое решение задачи об изменении средних размеров островков со временем [58]. Равновесная концентрация атомов вблизи мелких островков выше чем возле крупных. Поэтому мелкие островки теряют атомы и уменьшаются в размерах, а крупные – поглощают Этот процесс называется атомы И увеличиваются. оствальдовским созреванием островков. Средний размер островков на поверхности зависит от времени степенным образом. Оценка из соображений размерностей дает показатель степени 1/3 [18]. Точное решение дает показатели степени 1/3 и 1/4 для массопереноса, ограниченного выходом атомов из островков и диффузией между островками, соответственно [58].

Для адекватного описания выглаживания вицинальной поверхности, в теорию оствальдовского созревания нужно ввести сток атомов в ступени. Решение дифференциальное уравнения с дополнительным слагаемым может оказаться нетривиальным [59]. Градиентом средней концентрации атомов и критического размера островков по площади террас можно пренебречь,

считая созревание островков квазистационарным. Однако, это может оказаться не так на начальном этапе созревания островков при большой ширине террас. Затем нужно учесть рекомбинацию островков и озёр, что может повлиять на последовательность решения. Наконец, при выглаживании вицинальной поверхности с исходной среднеквадратичной шероховатостью более монослоя, островки и озёра будут расположены друг на друге, и это может оказаться наиболее сложным препятствием для создания теории оствальдовского созревания на ступенчато-террасированной поверхности.

Разумной альтернативой развитию аналитической теории оствальдовского созревания может стать использование численных методов для решения уравнения диффузии атомов и вакансий по поверхности с зависящими от времени границами террас, островков и озёр. В отличие от диффузии атомов и молекул в жидкостях и газах, атомы на поверхности кристалла большую часть времени неподвижны находятся И В фиксированных положениях. Перемещение атомов ПО поверхности происходит путем (1) прыжков атомов на соседние свободные места, (2) обмена местами адсорбированного атома и атома в кристаллической решетке и (3) диффузии вакансий за счет перемещения соседних атомов [25]. Перечисленные механизмы можно моделировать методом Монте-Карло, задав поверхностным атомам вероятности прыжка, зависящие от количества латеральных связей. Следует отметить, что при диффузии атомов вдоль ступени доминирует диффузия в потенциальной "канавке" у ступени без отрыва атомов от ступени [52].

Моделирование атомных процессов на поверхности методом Монте-Карло является стандартным методом описания роста кристаллов [60], зарождения [61] и коалесценции островков [62] на плоской поверхности, движения и эшелонирования ступеней [63]. Сравнение экспериментальных результатов по кинетике роста поверхности с моделированием Монте-Карло

широко используется для определения эффективных микроскопических параметров поверхности, как описано в п. 1.4.

В [22] проведено моделирование эпитаксиального роста поверхности GaAs(001) и "восстановления" поверхности при прерывании роста. Режим роста был выбран вблизи перехода от ступенчато-слоевого механизма роста к процессе островковому, поэтому В роста террасы покрывались моноатомными островками. Из-за поглощения островков движущимися вицинальными ступенями поверхность остается ступенчатотеррасированной, но ступени приобретают неровную форму. Релаксация морфологии такой поверхности при прерывании происходит роста аналогично заключительным этапам выглаживания шероховатой поверхности: островки встраиваются в ступени и ступени выпрямляются. Однако восстановление поверхности проводится не в равновесных условиях, а в потоке As. Прерывание роста обеспечивалось отключением потока Ga. Моделирование проводилось в двухкомпонентной модели с запретом нависаний ("твердое на твердом", SOS-модель), учитывались адсорбция и десорбция компонент. Размеры модельной области не указаны; приведенные на иллюстрациях участки поверхности имеют размер около 40 х 40 нм. Параметры модели были подобраны так, чтобы воспроизвести экспериментальные результаты ПО осцилляциям интенсивности дифракционных рефлексов в ходе роста поверхности. Полученные значения составили: энергии активации диффузии $E_d^{Ga} = 1.64$ эВ, $E_d^{As} = 1.23$ эВ, связей $E_{\rm b}^{\rm Ga} = 0.30$ эВ, $E_{\rm b}^{\rm As} = 0.40$ эВ и энергии латеральных энергии нормальных связей $E_n^{Ga} = 0.05 \text{ эB}, E_n^{As} = 0.05 \text{ эB}.$

В [64] моделировалось выглаживание полированной поверхности SrTiO₃(001) при отжиге в вакууме. Из-за отсутствия летучих компонент выглаживание титаната стронция ближе к вакуумному отжигу Si, чем к термическому выглаживанию GaAs в равновесных условиях. Исходная поверхность покрыта моноатомными островками и озёрами неправильной

формы, разделенными извилистыми вицинальными ступенями. Схожая промежуточных морфология поверхности наблюдается на этапах термического выглаживания GaAs. При отжиге островки И озёра встраиваются в вицинальные ступени, увеличивается характерный размер неровностей ступеней, но в эксперименте поверхность не выглаживается полностью, вотличие от моделирования, в котором наблюдалось полное Для выпрямление ступеней. моделирования использовалась однокомпонентная модель с периодическими граничными условиями. Размер модельной области варьировался от 100 х 100 нм до 800 х 800 нм. Рельеф исходной поверхности задавался случайным с нормальным распределением по высоте или брался из экспериментальных изображений, сжатых до размеров модельной области. Для количественного сопоставления с экспериментом измерялись покрытие поверхности террасами и концентрация островков и озёр, оценивались время выглаживания и средние размер островков и озёр. Определены энергии связей с соседними атомами и барьер Швёбеля $E_{\rm b} = E_{\rm S} = 0.27$ эВ. Энергия активации диффузии принята равной энергии связи между атомами.

В [65] проведено моделирование образования одиночной атомной ступени из газа адатомов на плоской поверхности. Начальная концентрация адатомов линейно возрастала в направлении поперек будущей ступени. Такое распределение адатомов является стационарным решением уравнения диффузии и соответствует постоянному потоку адатомов от одного края модельной области к другому. При включении латерального взаимодействия адатомы собираются в островки, которые, в свою очередь, сливаются и образуют ступень. В области, где начальное покрытие поверхности адатомами превышало 1/2, массоперенос обеспечивался вакансиями и образовались озёра. Моделирование проводилось в однокомпонентной однослойной модели, в которой диффузия адатомов по верхней террасе запрещена. Концентрация адатомов на границах модельной области

искусственно поддерживалась постоянной без сохранения количества вещества. Размер модельной области составлял 200 х 200 ячеек. В процессе отжига измерялось покрытие поверхности адатомами, усредненное вдоль направления будущей ступени. Сопоставления результатов моделирования с экспериментальными данными не проводилось. В моделировании время задавалось количеством попыток диффузионного прыжка для каждого адатома, поэтому энергия активация диффузии не вводилась. Безразмерная энергия латеральной связи E_b/kT , где k – постоянная Больцмана, T – температура, была выбрана равной 2.5 (что соответствует 0.19 эВ при 625°С).

1.4. Микроскопические параметры массопереноса на поверхности GaAs(001)

Основными параметрами модели кристалла, определяющими атомные процессы на поверхности, являются энергия активации диффузии E_d и энергия латеральной связи *E*_b всех компонент. Однако если в моделировании не нужно учитывать возможное нарушение стехиометрии поверхности, можно заменить раздельное моделирования массопереноса всех компонент на моделирование переноса компонента, который лимитирует изучаемый процесс. Такой подход успешно применялся для моделирования роста двухкомпонентной системы GaAs [19,20] и выглаживания трехкомпонентной системы титаната стронция [64]. Атомные процессы на поверхности GaAs, как правило, лимитированы массопереносом галлия, поскольку у мышьяка коэффициент диффузии по поверхности GaAs больше, чем у галлия [21]. Кроме эпитаксиальный рост того, или термическое выглаживание поверхности GaAs проводятся в условиях избытка мышьяка на поверхности или близких к равновесию между поверхностью и парами Ga и As.

Коэффициент диффузии и энергию активации диффузии галлия на поверхности GaAs можно определить по осцилляциям зеркального

максимума дифракции быстрых электронов (RHEED) BO время эпитаксиального роста GaAs [66]. Если ширина террас не превышает длины диффузии, все адсорбированные на террасы атомы достигают вицинальных ступеней и встраиваются в них. Рост происходит послойно, и интенсивность зеркально отраженного от террас луча электронов меняется со временем слабо. Если ширина террас больше длины диффузии, на террасах образуются островки, которые впоследствии поглощаются набегающими вицинальными ступенями. В результате рассеяния электронов на то появляющихся, то исчезающих островках, наблюдается осцилляции интенсивности зеркального максимума дифракции. По мере перехода от ступенчато-слоевого к островковому механизму роста осцилляции затухают. Процесс смены механизма роста был впоследствии изучен с помощью моделирования Монте-Карло [67]. В работе [66] угол разориентации поверхности $\theta = 2.25^{\circ}$, соответствующий ширине террас L = 18.7 нм, был определен по смешению границы тени на дифракционной картине от её ожидаемого положения для сингулярной грани. Варьируя поток галлия на поверхность и сравнивая длину диффузии с рассчитанной шириной террас, авторы [66] измерили коэффициент диффузии Ga по поверхности GaAs(001)-(2 x 4) в диапазоне температур $T = 525 - 610^{\circ}$ C. Соответствующая энергия активации диффузии составила $E_d = 1.3 \pm 0.1$ эВ.

В работе [68] предложено определять коэффициент диффузии по ширине дифракционных максимумов. В кинематическом приближении дифракции ширина зеркального максимума дифракции определяется корреляционной длиной рельефа поверхности. Островки, образующиеся на террасах, собирают весь материал с расстояния порядка длины диффузии, поэтому размеры островков и, следовательно, корреляционная длина пропорциональны длине диффузии. Был измерен коэффициент диффузии Ga по поверхности GaAs(001) в диапазоне температур $T = 550 - 650^{\circ}$ С. Для реконструкции (2 х 4) ширина дифракционного максимума не зависит от

температуры. Для реконструкции (1 х 1) было измерено сравнительно большое значение $E_d = 4.0$ эВ, которое может свидетельствовать об образовании и разрыве новых связей между поверхностью и атомом Ga во время диффузии.

В работе [69] коэффициент диффузии измерялся по исчезновению осцилляций интенсивности зеркального дифракционного максимума при увеличении температуры и фиксированном потоке галлия на поверхность. Метод измерения в целом аналогичен использованному в работе [66], за исключением того, что длина диффузии варьировалась за счет изменения температуры, потока Для измерения a не галлия. анизотропного коэффициента диффузии использовались подложки с углом разориентации в диапазоне $\theta = 0 - 5^{\circ}$ вдоль кристаллографических направлений [110] и [1 $\overline{1}$ 0]. Углы разориентации были измерены с точностью 0.1° с помощью дифракции Коэффициент диффузии в рентгеновского излучения. произвольном направлении равен $D_{\alpha} = D_{110} \cos^2 \alpha + D_{1\overline{10}} \sin^2 \alpha$, где угол α отсчитывается от направления [110]. Были получены анизотропные коэффициенты диффузии $D_{1\bar{1}0} = 4D_{110}$ в диапазоне температур T = 550 - 620°С, в то время как энергия активации диффузии Ed = 2.8 эВ не зависит от направления. Анизотропия коэффициента диффузии была объяснена направлением димеров As-As. Расхождение энергии активации диффузии со значением из [66] объяснено большим потоком галлия на поверхность, который мог увеличить шероховатость поверхности.

Больше информации о механизмах эпитаксиального роста поверхности можно получить из сравнения экспериментов с моделированием. В работе [19] переход от островкового к ступенчато-слоевому режиму роста поверхности GaAs(001)-(2 x 4) моделировался методом Монте-Карло. Использовалась однокомпонентная модель, в которой учитывались только адсорбция и диффузия галлия по поверхности, в предположении, что рост

проводится в условиях избытка мышьяка на поверхности. Параметры модели были подобраны так, чтобы воспроизвести экспериментальную зависимость температуры перехода между режимами роста от потока галлия и угла температур $T = 540 - 620^{\circ}$ С. разориентации поверхности диапазоне В Простота и эффективность используемой модели позволили накопить необходимую Моделирование на статистику. проводилось участке поверхности размером 90 х 90 нм со ступенями вдоль диагонали. Получены эффективные значения энергии активации диффузии $E_d = 1.58 \pm 0.02$ эВ и энергии латеральной связи $E_{\rm b} \approx 0.24$ эВ, которые должны зависеть как от соотношения потоков Ga и As, так и от реконструкции поверхности. Достигнуто хорошее согласие между модельными кинетиками плотности ступеней на поверхности и экспериментальными кинетиками интенсивности дифракционных рефлексов. Однако при прерывании роста, в моделировании островки на террасах встраивались в вицинальные ступени быстрее, чем в эксперименте. В работе [20] было показано, что для воспроизведения кинетики эпитаксиального роста и восстановления поверхности при прерывании роста в моделировании при одних и тех же значениях параметров необходимо ввести барьер Швёбеля на переход атомов через ступени. Моделирование проводилось в однокомпонентной модели, при энергии активации диффузии $E_{\rm d} = 1.54$ эВ, энергии латеральной связи $E_{\rm b} \approx 0.23$ эВ и барьере Швёбеля $E_{\rm S} = 0.175$ эВ.

В работе [21] было проведено моделирование эпитаксиального роста поверхности GaAs(001) с учетом анизотропии и в двухкомпонентной модели. Подвергнуто критике моделирование двухкомпонентных полупроводников в однокомпонентной модели, использованное в работах [19,20], в котором нельзя пронаблюдать влияние отношения потоков компонент на кинетику роста поверхности. Моделирование проводилось на простой кубической решетке, которая идентична нереконструированной поверхности GaAs(001). На этой поверхности атомные плоскости Ga и As чередуются. Попавший в

"чужую" плоскость атом перемещался на случайно выбранное в некоторой окрестности место в "своей" плоскости или удалялся с поверхности. Такой подход позволяет моделировать эпитаксиальный рост двухкомпонентного полупроводника с той же скоростью счета, что и в однокомпонентной модели. Моделирование проводилось на участке поверхности размером 45 х 45 нм. Модельные кинетики плотности ступеней сравнивались с интенсивностью дифракционных максимумов при эпитаксиальном росте GaAs(001) при T = 530 - 560°C. Также с экспериментами сравнивалась форма островков. Вытянутая форма островков объяснена анизотропией энергии латеральных связей Ga. Получены эффективные значения энергии активации диффузии $E_d^{Ga} = 1.64$ эВ, $E_d^{As} = 1.23$ эВ и энергии латеральной связи $E_b^{Ga}([011]) = 0.03$ эВ, $E_b^{Ga}([011]) = 0.32$ эВ, $E_b^{As}([011]) = 0.4$ эВ, $E_b^{As}([011]) = 0.05$ эВ.

Следующий этап в построении модели поверхности состоит в учете реконструкций поверхности. Моделирование Монте-Карло эпитаксиального роста β2(2 x 4)-реконструированной поверхности GaAs(001) проведено в [23]. Сложность такого моделирования значительно превосходит работе работы, описанные выше, поскольку, кроме взаимодействия отдельных атомов, необходимо учитывать димеризацию атомов и взаимодействие димеров друг с другом. Для определения большого числа модельных осцилляциями интенсивности дифракционных параметров, наряду с максимумов, широко использовались данные о структуре поверхности в начальный момент роста, полученные методом сканирующей туннельной микроскопии. Было воспроизведено экспериментально наблюдаемое зарождение островков на димерных рядах с последующим заполнение канавок между димерными рядами, рост согласованных элементарных ячеек реконструкции без вакансий на стыках ячеек и образование новых димерных рядов на островке. Моделирование проводилось на участке поверхности

48 х 48 нм. Полный набор параметров включает в себя энергию активации диффузии $E_d^{Ga} = 1.40$ эВ, $E_d^{As_2} = 1.65$ эВ и энергию латеральных связей $E_b^{Ga}([\bar{1}\ 10]) = 0.25$ эВ, $E_b^{Ga}([110]) = 0.28$ эВ, энергию формирования димеров $E_b^{Ga-Ga}([\bar{1}\ 10]) = 0.32$ эВ, $E_b^{Ga-Ga}([110]) = 0.28$ эВ, $E_b^{As-As}([\bar{1}\ 10]) = 0.63$ эВ и энергию взаимодействия димеров $E_b^{(As-As)x2}([110]) = 1.0$ эВ (согласованные димеры), $E_b^{(As-As)x2*}([110]) = 0.15$ эВ (несогласованные димеры), энергию отталкивания димерных рядов $E_{CR} = 1.71$ эВ, энергию встраивания в поверхность $E_{inc}^{As_2} = 1.74$ эВ и энергию десорбции $E_{des}^{As_2} = E_{inc}^{As_2} + 0.65$ эВ. Наличие атомарного мышьяка на поверхности не учитывалось.

Вместо задания энергий взаимодействия между компонентами, их димерами и поправок к ним, можно использовать атомный потенциал и моделировать поверхность методами молекулярной динамики. В работе [70] рассчитан адиабатический потенциал элементарных ячеек реконструкций β2(2 x 4), β(2 x 4), c(4 x 4) и ступеней А- и В-типа на β2(2 x 4)реконструированной поверхности для атомов Ga и As. Использовался эмпирический потенциал Терсофа. Для реконструкции $\beta 2(2 \ge 4)$ была получена энергия активации диффузии $E_{d}^{-110,Ga} = 1.7$ эВ, $E_{d}^{-110,Ga} = 2.1$ эВ, $E_{\rm d}^{-110,\rm As} = 1.6$ эВ, $E_{\rm d}^{110,\rm As} = 1.5$ эВ, что близко к значениями, полученных из ростовых экспериментов. При диффузии атома вдоль ступени энергии активации диффузии может отличаться как в большую, так и в меньшую сторону от диффузии по плоской поверхности. Глубоких минимумов энергии вблизи ступеней, которые могли бы служить местами встраивания атомов в ступень найдено не было, что может быть следствием используемых приближений или свидетельствовать о том, что к ступени пристраиваются элементарные ячейки реконструкции, а не отдельные атомы.

Более строгой альтернативой молекулярной динамики являются расчеты из первых принципов. В работе [71] была рассчитана энергия
активации диффузии атомов Ga по поверхности GaAs(001)-(2 x 4). Для этого были построена поверхность потенциальной энергии (PES) в приближении Борна-Оппенгеймера для элементарной ячейки реконструкции с помощью теории функционала плотности и обобщенного градиентного приближения и найдены локальные минимумы потенциальной энергии. Вероятности перехода между минимумами были рассчитаны с помощью теории переходных состояний (TST). Коэффициенты диффузии были определены в модели случайных блужданий, в предположении, что прыжки атомов между минимумами потенциальной энергии не коррелированы. Были получены значения энергии активации диффузии $E_d^{-110} = 1.2$ эВ, $E_d^{110} = 1.5$ эВ, которые систематически меньше значений, полученных из описанных выше ростовых экспериментов и моделирования Монте-Карло.

1.5. Термическое разупорядочение рельефа поверхности

Вопрос о равновесном рельефе поверхности кристалла при различных температурах впервые рассматривался Я.И. Френкелем [28], история вопроса обсуждается в обзоре Р.А. Суриса [30]. Шероховатость граней кристалла увеличивается с ростом температуры за счет "разбалтывания" вицинальных ступеней и выхода атомов из ступеней на террасы. При высоких температурах кристалл теряет огранку [17,18,56], а на микроскопическом уровне происходит "огрубляющий переход" от гладкой поверхности к шероховатой. В известной работе Бартона, Кабреры и Франка [29] разупорядочение рельефа поверхности при высоких температурах было теоретически рассмотрено с использованием двумерной модели Изинга. Позднее было показано [72,73], что огрубляющий переход является фазовым переходом Березинского-Костерлица-Таулеса (БКТ) [72], который описывает широкий класс явлений в двумерных системах. Для перехода БКТ характерна очень слабая особенность вблизи критической температуры *T*_R, так что все

производные свободной энергии по температуре обращаются в ноль при $T = T_{\rm R}$. За счет энтропийного вклада в свободную энергию, линейное натяжение атомных ступеней при температуре перехода $T_{\rm R}$ уменьшается до нуля, поэтому при $T > T_{\rm R}$ становится выгодным образование новых ступеней, и поверхность превращается из гладкой в шероховатую [17,18]. В работе [73] показано, что учет межатомного взаимодействия вторых соседей приводит к тому, что на фазовой диаграмме появляется область, соответствующая "разупорядоченной плоской" ("disordered flat") поверхности, переход к которой назван "предварительным огрублением" ("preroughening").

Несмотря на то, что огрубляющий переход был подробно исследован в теоретических работах, вопрос об экспериментальном наблюдении и микроскопических механизмах такого перехода все еще остается открытым. В работе [74] с помощью интерференционного микроскопа обнаружена потеря огранки ледяной призмы при $T = -2^{\circ}$ C. В работе [75] из измеренной кинетики флуктуаций формы атомных ступеней на поверхности Si(001) определена температурная зависимость линейного натяжения ступеней. $T_{\rm R} \sim 1200^{\circ}{\rm C}$ огрубляющего Температура перехода была получена экстраполяцией этой зависимости в область высоких температур, где прямое экспериментальное наблюдение перехода использованным в [75] методом оказалось невозможным вследствие высокой скорости сублимации. На поверхности Si(111) атомные ступени остаются прямолинейными вплоть до высоких температур $T_{\rm sm} = 1290^{\circ}$ С, и вместо огрубляющего перехода происходит "поверхностное плавление", при котором приповерхностный слой разупорядочен на атомарном уровне, а значительная часть атомов в этом слое отсутствует [76,27]. Причины качественных отличий в эволюции кристаллографических рельефа поверхностей кремния различных ориентаций до сих пор не выяснены.

В работе [15] переход от атомно-гладкой к шероховатой поверхности экспериментально исследован на грани (001) арсенида галлия в зависимости

от температуры отжига и давления паров мышьяка As₄ в ростовой камере установки МЛЭ. Установлено, что при достаточно больших давлениях паров As₄ и относительно низких температурах происходит формирование атомногладких террас, разделенных моноатомными ступенями. При уменьшении давления As₄ и повышении температуры рельеф поверхности огрубляется. Удивительно, что авторам работы [15] удалось найти соответствие между своими результатов и предсказаниями теории [73], хотя зависимость температуры перехода от давления паров мышьяка указывает на то, что в процессах выглаживания И разупорядочения рельефа поверхности существенную роль играют поверхностные реконструкции, которые в теории не учитывались. Кроме того, в ростовой камере не обеспечивалось равновесное давление паров галлия, поэтому условия отжига, строго говоря, нельзя считать равновесными, а огрубление рельефа, наблюдавшееся при высоких температурах, могло происходить вследствие сублимации.

Одна из главных причин сложности экспериментального наблюдения огрубляющего перехода состоит в том, что при высоких температурах, когда величины потоков с поверхности и на поверхность экспоненциально возрастают, равновесие поддерживать трудно. Отклонение условий от равновесных может привести к огрублению рельефа поверхности вследствие кинетических нестабильностей при росте, сублимации или травлении кристалла [53,54,55,56]. Одна из известных неустойчивостей поверхности, проявляющаяся при росте и сублимации, состоит в эшелонировании вицинальных ступеней. Встраивание атомов в ступени при росте и выход из ступеней при сублимации происходит предпочтительно на нижележащую террасу. Такую асимметрию можно описать дополнительным барьером на встраивание и выход из ступени на вышележащую террасу, называемым барьером Швёбеля. Если в процессе роста одна из террас становится уже, на неё осаждается меньше атомов, чем на соседние террасы. Поскольку адсорбированные атомы встраиваются преимущественно в вышележащую

ступень, её продвижение замедляется, и ширина террасы увеличивается. Таким образом, при росте барьер Швёбеля стабилизирует ступенчатотеррасированную поверхность. Наоборот, при сублимации замедленное отступление вышележащей ступени приводит к тому, что её настигает следующая ступень и, таким образом, образуется эшелон ступеней. Следует отметить, что эшелонирование ступеней можно рассматривать и как огрубление поверхности, поскольку увеличивается при ЭТОМ среднеквадратичная шероховатость, и как выглаживание поверхности из-за увеличения ширины атомно-гладких, бесступенчатых террас [10]. Получение широких, бесступенчатых террас важно для ряда применений, в частности, для создания идеально гладких лазерных зеркал, а также тест-объектов для измерения аппаратной функции зондовых микроскопов [77].

Форма вицинальных ступеней отдельных тоже может быть неустойчива во время роста. Если на ступени образуется выступ в нижележащей террасы, то в направлении ЭТОТ выступ усиливается поступление атомов с нижележащей террасы И ослабляется С вышележащей. Без барьера Швёбеля, когда вероятность встраивания атома с выше- и нижележащих террас одинакова, суммарное поступление атомов в выступ ступени не меняется. Наличие барьера Швёбеля приводит к преимущественному встреванию в ступень атомов с нижележащей террасы и, следовательно, к увеличению скорости роста выступа по сравнению со скоростью продвижения прямолинейной ступени. Так образуются вытянутые "пальцеобразные" выступы ступеней за счет диффузионной неустойчивости Бейлса–Зенгуила (Bales–Zangwill) при росте [56,78]. При сублимации скорость отступления выступа тоже увеличивается по сравнению со скоростью отступления прямолинейной ступени, но это приводит к фронта разглаживанию ступени. Аналогичная неустойчивость кристаллизации, называемая неустойчивостью Мюллинса–Секерки (Mullins– Sekerka) [54,79], приводит к преимущественному росту выступов или ребер

кристалла и образованию дендритов или скелетных кристаллов, например, снежинок.

Наконец, локальная остановка и эшелонирование ступеней при росте и сублимации может быть вызвано наличием центров торможения на поверхности. В качестве таких центров торможения могут выступать загрязнения поверхности посторонним веществом. Например, при отжиге Si(111) в ультравысоком вакууме при $T = 900 - 1000^{\circ}$ C наблюдается образование на поверхности наночастиц карбида кремния размером 5 – 10 нм [10]. При сублимации поверхности вицинальные ступени "зацепляются" за эти частицы, но продолжают отступление, обтекая их. Прохождение последующих ступеней через центры торможения приводит к образованию коротких эшелонов ступеней вблизи центров торможения и флуктуациям расстояния между ступенями вдали от центров торможения. Тем не менее, вдали от центров торможения ступени остаются моноатомными. При увеличении температуры отжига поверхность очищается от этих частиц. Для двухкомпонентных полупроводников увеличение температуры, наоборот, может приводить к образованию центров торможения. В работе [51] при отжиге поверхности GaAs(001) в атмосфере водорода при давлении 14 торр и $T \le 600^{\circ}$ С поверхность оставалась гладкой. При увеличении температуры отжига наблюдалось огрубление поверхности, состоящее в формировании ямок травления и капель Ga в процессе неконгрузнтного испарения поверхности и эшелонировании вицинальных ступеней.

Постановка задачи

Обзор литературы показывает, что к настоящему времени развит эффективный метод термического выглаживания поверхности GaAs(001) [13,14]. Однако, многие вопросы, связанные с получением ступенчатотеррасированных поверхностей GaAs(001), остаются открытыми. Известно,

как происходит выглаживание поверхности на качественном уровне, но адекватной теории процесса выглаживания нет. Теория оствальдовского созревания описывает выглаживание сингулярной грани, но не подходит для вицинальной поверхности. Моделирование Монте-Карло термического выглаживания шероховатой поверхности полупроводников после химикомеханического полирования не проводилось. Неясно, может ли такое моделирование адекватно описать кинетику формирования ступенчатотеррасированной поверхности GaAs(001) при разумных значениях параметров модели. Диапазон известных из литературы значений модельных параметров – энергии активации поверхностной диффузии и энергии связи атомов – весьма широк, поэтому по-прежнему актуальна задача уточнения значений этих параметров ИЗ анализа новых экспериментов ПО выглаживанию поверхности. He определены оптимальные условия термического выглаживания. Неясны механизмы огрубления поверхности GaAs(001), сменяющего выглаживание при повышенных температурах $T \ge 700^{\circ}$ C. Неизвестно, какие параметры исходной поверхности определяют итоговую морфологию поверхности при огрублении.

Цель данной работы состоит в выяснении механизмов термического выглаживания и разупорядочения поверхности GaAs(001) с помощью метода моделирования Монте-Карло и сопоставления результатов моделирования с экспериментом, определении параметров модели и оптимизации условий выглаживания. Для достижения поставленной цели в данной работе решались следующие задачи:

1. Выполнить количественное описание процесса термического выглаживания поверхности GaAs(001) методом Монте-Карло в модели кристалла Косселя и найти параметры модели, определяющие этот процесс.

2. Проанализировать экспериментальные данные по выглаживанию поверхности с литографической меткой для определения величины отклонения условий отжига GaAs от равновесия.

3. Выявить кристаллографическую анизотропию рельефа поверхности GaAs(001) в процессе выглаживания.

4. Изучить особенности оствальдовского созревания островков и озёр на ступенчато-террасированной поверхности.

5. Установить причины и выяснить микроскопические механизмы разупорядочения рельефа поверхности GaAs(001) при $T \ge 700^{\circ}$ C.

6. Объяснить особенности разупорядочения рельефа ступенчатотеррасированных поверхностей GaAs(001) с различной шириной террас.

7. Оптимизировать условия (уменьшить длительность) выглаживания поверхностей GaAs с учетом ограничений, налагаемых процессами разупорядочения рельефа поверхности при высоких температурах.

Глава 2. Методика

В этой главе изложена методика проведенных ранее экспериментов по термическому выглаживанию поверхности GaAs(001) [13,14] (п. 2.1) и детально описаны использованные в данной работе методы задания исходной шероховатой поверхности и моделирования Монте-Карло (п. 2.2 – 2.3). Обсуждаются вопросы применимости однокомпонентной модели для моделирования двухкомпонентного полупроводника.

2.1. Методика термического выглаживания поверхности GaAs

Экспериментальные термическому данные ПО выглаживанию поверхности GaAs, которые в данной работе сопоставлялись с результатами моделирования, получены ранее путем отжига "epi-ready" подложек со среднеквадратичной шероховатостью $\rho_{\rm rms} \leq 0.15$ нм и углом разориентации $\theta \le 0.1^{\circ}$ при $T = 600 - 650^{\circ}$ C в условиях, близких к равновесию между поверхностью и парами Ga и As [13,14]. Отжиг проводился в кварцевой трубе установки жидкофазной эпитаксии в потоке молекулярного водорода, очищенного палладиевым фильтром. Условия, близкие к равновесию обеспечивались двумя способами. В первом способе, подложка GaAs была накрыта другой пластиной GaAs. Ширина узкой щели ("двумерного капилляра") между прилегающими поверхностями определялась ИХ макроскопической гладкостью и не превышала 1 мкм. Во втором методе, равновесные условия обеспечивались наличием насыщенного расплава Ga-As в квазизамкнутом графитовом контейнере. Отжиг при повышенных температурах $T = 700 - 775^{\circ}$ С проводился в той же экспериментальной установке.

Перед отжигом, подложки обрабатывались в растворе HCl в изопропиловом спирте для удаления оксидов с поверхности [80]. Затем подложки быстро (в течение минуты) помещались в графитовый контейнер и

загружались в кварцевую трубу в потоке азота, чтобы минимизировать повторное окисление поверхности. Труба с контейнером откачивалась и заполнялась чистым молекулярным водородом. Тонкий слой оксидов, который мог сформироваться во время загрузки, восстанавливался в водороде и испарялся с поверхности на начальном этапе выглаживания. Морфология исходной и отожженной поверхностей GaAs изучалась ex situ с помощью атомно-силового микроскопа (ACM) Solver P-47H (NT-MDT) в ЦКП "Наноструктуры" В предположении, что слой оксидов, сформировавшийся на воздухе после отжига, воспроизводит рельеф поверхности с субмонослойной точностью. Подробности подготовки поверхности, отжига и АСМ-измерений описаны в работах [13,14].

2.2. Моделирование рельефа исходной шероховатой поверхности

Для изучения процесса выглаживания поверхности методом моделирования Монте-Карло необходимо подготовить модель исходной шероховатой вицинальной поверхности с рельефом, имитирующим рельеф "epi-ready" подложки. поверхности Подготовка такой поверхности проиллюстрирована на рис. 2. Начнем с плоской наклонной плоскости, показанной на рис. 2а. Округление высоты до ближайшего целого числа монослоев (МС) дает идеальную ступенчато-террасированную поверхность (рис. 2b). Осаждение адатомов на такой поверхности при низких температурах, когда поверхностная диффузия подавлена, дает поверхность с шероховатыми террасами. Однако прямые границы между террасами остаются хорошо видимыми (не показаны), в отличие от рельефа "epi-ready" подложек. Чтобы подготовить более адекватную модель шероховатой вицинальной поверхности, к плоской наклонной плоскости были добавлены равномерно распределенные случайные величины с амплитудой распределения 0.75 MC. Результат показан на рис. 2d. Последующее



Рисунок 2. Топограммы модельных поверхностей, иллюстрирующие подготовку исходной шероховатой вицинальной поверхности. (а) Плоская наклонная плоскость; (b) идеальная ступенчато-террасированная поверхность, полученная из (а) округлением высоты до ближайшего целого числа монослоев; (c) поверхность, полученная выравниванием поверхности (b) по средней плоскости; (d-f) шероховатые поверхности, полученные путем добавления случайных значений к поверхности (а), последующего округления и выравнивания, соответственно.

округление высоты дает модель шероховатой вицинальной поверхности без следов вицинальных ступней (рис. 2е). Выравнивание рельефа, показанного на рис. 2b,е по средней плоскости, дает рельеф, показанный на рис. 2c,f, соответственно. Такое выравнивание используется при обработке ACM изображений. Поверхность, показанная на рис. 2f, использовалась в качестве исходной шероховатой поверхности для моделирования выглаживания. Шероховатость этой поверхности задана близкой к шероховатости подложек, которые использовались в экспериментах по термическому выглаживанию ($\rho_{RMS} \leq 0.15$ нм ≈ 0.5 MC), подбором амплитуды распределения случайных

величин, которые прибавлялись к плоской поверхности. Аналогичный метод подготовки модели исходной поверхности был использован в работе [64].

2.3. Метод моделирования Монте-Карло и параметры модели

выглаживания проводилось в однокомпонентной Моделирование модели на кристалле Косселя методом Монте-Карло [67,81]. Постоянная была выбрана равной латеральному решетки модельного кристалла нереконструированной расстоянию между атомами на поверхности GaAs(001): $a_0 = 0.4$ нм. Структура элементарной ячейки и поверхностные реконструкции не учитывались. Диффузия атомов Ga и As и образование элементарных ячеек GaAs заменены диффузией одного вида эффективных "атомов". На первый взгляд, использование такой модели является слишком большим упрощением, поскольку эта модель не учитывает реальную атомную структуру поверхности, раздельный массоперенос Ga и As и, наконец, равновесные условия для обоих компонент. Тем не менее, эта модель использовалась и ранее для описания эпитаксиального роста GaAs выглаживания [19,20] И поверхности сложных соединений [64]. Использование модели кристалла Косселя для описания термического выглаживания GaAs можно, до некоторой степени, обосновать тем, что выглаживание проводится в условиях, близких к равновесию с парами Ga и As, когда не происходит нарушения стехиометрии поверхности вследствие неконгруэнтной сублимации. Также известно, что диффузия на поверхности GaAs лимитирована переносом атомов Ga, поэтому можно полагать, что эффективные "атомы" в моделировании играют роль атомов галлия.

Схематическая иллюстрация модели поверхности, элементарных событий и измеряемых величин представлена на рис. 3. На рис. 3 показан "снимок" поверхности во время выглаживания, на полпути от исходной шероховатой поверхности к идеальной ступенчато-террасированной



Рисунок 3. Схематическая иллюстрация элементарных событий и величин, участвующих в моделировании Монте-Карло выглаживания поверхности: (1) перемещение атома по террасе; (2) встраивание в ступень; (3) выход из ступени; (4) десорбция с террасы; (5) адсорбция на террасу. *L* – средняя ширина террас, *d* – диаметр островка. Вицинальные ступени и периметр островков (за исключением отдельных адатомов) выделены толстыми линиями.

морфологии. В частности, вицинальные ступени уже сформировались, но имеют неровную, волнистую форму. Также, на террасах видны адатомы и островки. Атомы могут перемещаться в соседние свободные положения на террасе, встраиваться в ступени, выходить из ступеней, десорбироваться с и адсорбироваться на террасу. После случайного выбора атома на поверхности и события, это событие осуществляется с вероятностью *P*, рассчитанной по следующей формуле:

$$P = v_0 e^{-E/kT},\tag{1}$$

где $v_0 \sim 10^{13}$ Гц – дебаевская частота, E – энергия активации события (т.е. энергия активации диффузии E_d или энергия десорбции E_{des}), k – постоянная Больцмана, T – температура. В соответствии с алгоритмом Метрополиса [82], если после события количество латеральных связей атома уменьшается на n, вероятность события умножатся на $e^{-nE_b/kT}$, где nE_b – энергия, необходимая чтобы разорвать n латеральных связей:

$$P = v_0 e^{-(E + nE_b)/kT}.$$
 (2)

В условиях термодинамического равновесия такой выбор вероятности событий соответствует принципу детального равновесия. Кроме того,

"компенсация" обрываемых связей образующимися после диффузионного прыжка связями, когда вероятность события уменьшается в зависимости от разности количества связей до и после прыжка, позволяет моделировать диффузию атомов в потенциальной канавке у прямолинейной ступени, в соответствии с представлениями, развитыми в работе [52]. Модельное время увеличивается в соответствии с распределением Пуассона принятых событий времени. События независимы из-за случайного выбора атома и по использования большого размера модельной поверхности (~ 10⁵ атомов). В псевдослучайной моделировании используется генератор последовательности чисел xorshift128 с длиной последовательности $2^{128} - 1 \approx 3.4 \cdot 10^{38}$ ([83], c. 18).

Для учета массопереноса через газовую фазу, путем испарения и реадсорбции атомов, введены энергия десорбции E_{des} и атомный поток V на поверхность. Коэффициент прилипания принят равным единице. Для моделирования равновесия между поверхностью и газовой фазой, поток V поддерживается равным потоку с поверхности. Первоначально, поток атомов на поверхность корректировался с учетом разницы полного количества десорбированных и адсорбированных атомов. При этом не происходило роста или сублимации поверхности в целом, но, в зависимости от условий моделирования морфологии поверхности, наблюдались И быстрые осцилляции потока на поверхность, приводившие к образованию и распаду островков на террасах. Поэтому поддержание равновесного потока атомов на поверхность было заменено адсорбцией десорбированных атомов В случайном поверхности. Было проверено, месте на что кинетика выглаживания поверхности в обоих методах поддержания равновесия совпадает. Корреляции между десорбцией и адсорбцией атомов на поверхность не возникает, потому что эти события пространственно разнесены.

Глава 3. Моделирование термического выглаживания поверхности

В работах [13,14] был развит эффективный метод термического выглаживания поверхности GaAs(001) в равновесных условиях. Однако, механизмы формирования ступенчато-террасированных поверхностей остались известными только на качественном уровне. Как обсуждалось в главе 1, адекватной теории процесса выглаживания нет. В качестве замены такой теории в данной работе используется моделирование Монте-Карло в однокомпонентной модели кристалла Косселя, которое уже использовалось ранее для описания эпитаксиального роста GaAs(001).

В данной главе приведены результаты описания экспериментов по термическому выглаживанию GaAs(001) с помощью моделирования Монте-Карло. Проведен качественный анализ микроскопических механизмов выглаживания поверхности полупроводников (п. 3.1). Из аппроксимации моделированием измеренных ранее, в эксперименте по выглаживанию GaAs(001), кинетики длины ступеней и среднего размера островков и озёр определены параметры модели (п. 3.2 - 3.4). Эти параметры сопоставлены с известными из литературы значениями (п. 3.5). Для определения близости условий отжига к равновесным по смещению атомных ступеней, проведен анализ результатов эксперимента по выглаживанию поверхности GaAs(001) с литографической меткой (п. 3.6). По результатам этого эксперимента скорректированы параметры модели (п. 3.7).

Результаты, представленные в данной главе, опубликованы в работах [А1–А4, А8, А9, А16].

3.1. Кинетика выглаживания шероховатой поверхности

Экспериментальная и расчетная кинетика рельефа поверхности при формировании ступенчато-террасированной морфологии в результате отжига в равновесных условиях показана на рис. 4. Исходные шероховатые

поверхности показаны в левом столбце. Время отжига увеличивается слева направо. Экспериментальные ACM-изображения поверхности GaAs(001) [14] показаны в верхнем ряду. Отжиги проводилась на разных образцах размером $4 \times 8 \text{ мм}^2$, вырезанных из участка подложки GaAs(001) размером ~ 4 см^2 , поэтому направление ступеней и ширина террас различаются от образца к направления образцу неконтролируемых вариаций из-за угла И разориентации по поверхности подложки. На рис. 4а-е ширина террас варьируется в диапазоне L = 1.2 - 1.8 мкм. Моделирование выглаживания поверхности только за счет поверхностной диффузии и с переносом атомов через газовую фазу (путем десорбции и последующей реадсорбции) показано в среднем и нижнем рядах, соответственно. Ширина террас, равная $L \approx 70$ нм, и линейные размеры модельной поверхности в N = 20 и 35 раз меньше, соответственно, чем в эксперименте из-за ограниченных вычислительных ресурсов. Процедура определения параметров модели и учета разницы масштабов в эксперименте и моделировании описана ниже.

Из рис. 4 видно, что, несмотря на простоту модели и различные масштабы в моделировании и эксперименте, моделирование качественно воспроизводит эволюцию экспериментальной морфологии поверхности и позволяет проследить основные этапы выглаживания поверхности. Эти этапы состоят в (1) быстрой рекомбинации соседних адатомов и адвакансий, небольших островков и озёр; (2) росте крупных островов (и озёр) за счет мелких ("оствальдовское созревание", рис. 4b,g,l); (3) встраивании островков в ступени (рис. 3c,h,m) и выпрямлении ступеней (рис. 4d-e,i-j,n-o).

Сравнение модельных изображений поверхности в среднем и нижнем рядах показывает, что учет переноса атомов через газовую фазу приводит к уменьшению среднего размера островков. Качественное объяснение этого факта состоит в следующем. Десорбция приводит к уменьшению длины диффузии атомов по поверхности. В свою очередь, уменьшение длины диффузии приводит к уменьшению площади области, с которой вещество



Рисунок 4. Экспериментальные (a-e) и модельные (f-o) изображения рельефа поверхности до (a,f,k) и после отжига при температуре 900 К в течение 15 мин (b,g,l), 40 мин (c,h,m), 120 мин (d,i,n) и 480 минут (e,j,o) без учета (f-j) и с учетом (k-o) переноса атомов через газовую фазу. Изменения ширины террас в эксперименте (верхний ряд) обусловлено плавными изменениями угла разориентации поверхности по площади подложки.

собирается в островок. Из-за меньших начальных размеров островков, увеличение их размеров на последующих этапах выглаживания происходит с запаздыванием по сравнению со случаем, когда десорбция несущественна.

3.2. Определение параметров модели для поверхности GaAs(001)

Чтобы описать формирование ступенчато-террасированной морфологии и определить параметры модели, которые определяют процесс выглаживания, сравнивались экспериментальная и модельная кинетики полной длины $L_{\rm S}$ моноатомных ступеней. Эта длина включает длину вицинальных ступеней и длину периметра островков и озёр, отмеченных толстой линией на рис. 3. При подсчете $L_{\rm S}$, "периметр" отдельных адатомов и

вакансий учитывался. Безразмерная длина ступеней $l_{\rm s} = L_{\rm S} / L_0$ не нормированная на длину прямых ступеней L₀ на поверхности с той же более шириной террас, является адекватным параметром для рельефа количественного описания ступенчато-террасированной поверхности, чем среднеквадратичная шероховатость [13,14]. На первом этапе экспериментальная кинетика длины ступеней $l_s(t)$ сравнивалась с моделированием только поверхностной диффузии, без массопереноса через газовую фазу. На рис. 5 показаны экспериментальная и модельные кинетики $l_{\rm s}(t)$, рассчитанные для различных значений энергии активации диффузии $E_{\rm d}$ и энергии латеральных связей E_b. Видно качественное сходство графиков, хотя модельные кинетики зависят от значений E_d и E_b .

Быстрое уменьшение длины ступеней на начальном этапе отжига соответствует рекомбинации мелких островков и озёр. На следующем этапе уменьшение длины ступеней замедляется и соответствует оствальдовскому созреванию островков и их встраиванию в формирующиеся вицинальные ступени. Наконец, длина ступеней насыщается ДО значения, соответствующего равновесной ступенчато-террасированной морфологии. На этом этапе изменения длины ступеней вызваны тепловыми флуктуациями формы ступеней, а среднее значение l_s не зависит от времени. Как и следовало ожидать, равновесное значение длины ступеней определяется только величиной E_b (увеличивается при уменьшении E_b) и не зависит от E_d . Напротив, скорость прихода к равновесию, как видно из рис. 5, зависит как от $E_{\rm b}$, так и от $E_{\rm d}$ (увеличивается при уменьшении $E_{\rm b}$ и $E_{\rm d}$).

Чтобы описать различные этапы формирования ступенчатотеррасированной морфологии и определить время выглаживания поверхности, кинетика длины ступеней была аппроксимирована следующим полуэмпирическим выражением:

$$l_s = l_{s1}e^{-t/t_1} + l_{s2}e^{-t/t_2} + l_s^{eq}, aga{3}$$



Рисунок 5. Экспериментальная и модельные кинетики длины ступеней $l_s(t)$. Модельные кинетики рассчитаны для различных значений энергии активации диффузии E_d и энергии латеральных связей E_b . Линией показана аппроксимация формулой (3) экспериментальной кинетики и моделирования при $E_d = 1.75$ эВ, $E_b = 0.32$ эВ. Экспериментальное время выглаживания $t_s = 90$ мин, определенное по формуле (4), отмечено стрелкой.

где t_1 – время рекомбинации островков и озёр, t_2 - время оствальдовского созревания, l_{s1} и l_{s2} – соответствующие предэкспоненциальные множители, l_s^{eq} – равновесная длина ступеней. Для наших экспериментальных условий и параметров модели типичные значения t_1 находятся в диапазоне 0.1 - 0.5 мин, а значения t_2 – в интервале 5 – 40 мин. Аппроксимация модельной кинетики, соответствующей эксперименту, формулой (3) показана на рис. 5 сплошной линией. Время выглаживания поверхности t_s определено как время, когда второе слагаемое в формуле (3) в 10 раз меньше третьего:

$$t_s = t_2 \ln(10l_{s2}/l_s^{eq}).$$
(4)

Численный коэффициент 10 выбран таким образом, чтобы время выглаживания t_s соответствовало видимому выходу кинетики $l_s(t)$ на равновесное значение. На рис. 5 это время указано стрелкой. Аппроксимация экспериментальной кинетики моделированием дает значения $E_d = 1.75 \pm 0.03$ эВ и $E_b = 0.32 \pm 0.02$ эВ.

3.3. Учет разницы масштабов в моделировании и эксперименте

Полученное значение энергии активации диффузии E_d необходимо скорректировать с учетом разницы в размерах поверхности в эксперименте и моделировании. Грубую оценку этой поправки можно сделать, полагая, что, как и при случайных блужданиях, время выглаживания пропорционально квадрату ширины террас $t_s \sim L^2/D$, где $D = a_0^2 v_0 e^{-E_d/kT}$ – коэффициент поверхностной диффузии, a_0 – постоянная решетки. В соответствии с этим предположением, чтобы время выглаживания оставалось постоянным при увеличении ширины террасы в N раз, нужно уменьшить энергию активации диффузии на $\Delta E_d = 2kT \ln N$. При T = 900K и N = 20, поправка составляет $\Delta E_d = 0.45$ эВ и $E_d = 1.30 \pm 0.03$ эВ.

Чтобы точнее оценить поправку к энергии активации диффузии, было проведено моделирование выглаживания при различной ширине террас. Результаты показаны на рис. 6. На рис. 6а показана модельная зависимость времени выглаживания t_s от ширины террас L при энергии активации аппроксимирована диффузии $E_{\rm d} = 1.75$ эВ (круги). Эта зависимость степенной функцией $t_{\rm s} \sim L^{\beta}$ с $\beta = 2.40 \pm 0.02$ (сплошная линия). Таким образом, t_s увеличивается при увеличении L быстрее, чем в модели случайных блужданий ($\beta = 2$, пунктирная линия). Возможная причина этого отличия состоит в том, что при диффузии адатомов к вицинальным ступеням, адатомы "теряют время" на образование островков на террасах. На рис. 6b показана связь между энергией активации диффузии *E*_d и шириной террас *L* (круги) при постоянном времени выглаживания, равном экспериментальному $t_{\rm s} = 90$ мин. Экстраполяция этого графика до экспериментальной ширины террас L = 1.25 мкм дает энергию активации диффузии $E_d = 1.20 \pm 0.03$ эВ, что на 0.1 эВ меньше, чем оценка в модели случайных блужданий.



Рисунок 6. (а) Зависимость времени выглаживания t_s от ширины террас L при энергии активации диффузии 1.75 эВ. (b) Связь между энергией активации диффузии E_d и шириной террас L для фиксированного времени выглаживания $t_s = 90$ мин. Графики, рассчитанные без учета и с учетом переноса атомов через газовую фазу, показаны кругами и треугольниками, соответственно. Пунктирные линии соответствуют модели случайных блужданий.

3.4. Учет массопереноса через газовую фазу

Описанная выше оценка *E*_d проведена без учета массопереноса через газовую фазу. Чтобы выяснить вклад переноса атомов через газовую фазу в формирование ступенчато-террасированной поверхности и оценить энергию десорбции адатомов E_{des} , было проведено моделирование с учетом десорбции и реадсорбции атомов при различных значениях *E*_{des}. Результаты показаны на рис. 7. На рис. 7а показана связь между энергией активации диффузии E_d и энергией десорбции $E_{\rm des}$, рассчитанная при постоянном времени выглаживания $t_s = 90$ мин. Для достаточно больших значений $E_{des} \ge 2.2$ эВ массоперенос через газовую фазу не влияет на выглаживание поверхности, поскольку длина диффузии атомов $\lambda_D = \sqrt{D\tau_{des}}$ становится сравнимой с



Рисунок 7. (а) Связь энергии активации диффузии E_d и энергии десорбции E_{des} при постоянном времени выглаживания $t_s = 90$ мин. (b) Модельная зависимость среднего диаметра островов *d* от E_{des} после отжига в течение 15 мин. Значения E_d выбраны согласно (а).

шириной террас $L \leq \lambda_D$. Здесь τ_{des} – среднее время до десорбции атома с террасы. Для меньших значений энергии десорбции E_d увеличивается с уменьшением E_{des} , поскольку уменьшение E_{des} приводит к усилению массопереноса через газовую фазу и уменьшению времени выглаживания поверхности. Чтобы время выглаживания не менялось, необходимо уменьшить скорость поверхностной диффузии, увеличив E_d .

Чтобы разделить вклады поверхностной диффузии и переноса через газовую фазу в процесс выглаживания и определить значения как $E_{\rm d}$, так и E_{des}, одного времени выглаживания недостаточно. Для решения этой проблемы, в качестве дополнительного параметра морфологии поверхности использовался средний размер островов. Модельная зависимость среднего диаметра островов d (в атомных единицах) от энергии десорбции показана на рис. 7b (значения *E*_d взяты из рис. 7a). Эта зависимость соответствует времени отжига 15 мин, при котором островки террасах на уже



Рисунок 8. Модельная зависимость среднего диаметра d от ширины террас L для постоянного времени выглаживания (круги). Линией показана аппроксимация степенной функцией $d \sim L^{\beta}$ при $\beta = 0.58 \pm 0.06$.

сформировались, но еще не встроились в вицинальные ступени. Диаметр островка неправильной формы с площадью *S* определен как диаметр круглого островка с той же площадью: $d = 2\sqrt{S/\pi}$ (см. рис. 3). Видно, что увеличение E_{des} приводит к увеличению среднего диаметра островов вследствие увеличения длины диффузии адатомов.

Из сравнения размеров островов в моделировании и эксперименте можно определить по отдельности E_d и E_{des} . Однако прямое сравнение моделирования и эксперимента некорректно из-за разницы масштабов в эксперименте и моделировании. Чтобы преодолеть это затруднение, была получена модельная зависимость d(L) после отжига в течение 15 минут для различных значений E_{des} и E_d, при которых время выглаживания равно $t_{\rm s} = 90$ мин. Зависимость d(L)экспериментальному значению была экстраполирована до экспериментальной ширины террас. Из сравнения с экспериментом экстраполированного среднего размера островка определена энергия десорбции $E_{des} = 2.1 \pm 0.05$ эВ. Зависимость d(L), соответствующая полученному значению E_{des} , показана на рис. 8.

Теперь нужно скорректировать значение E_d с учетом переноса атомов через газовую фазу. Для этого были пересчитаны зависимости $t_s(L)$ и $E_d(L)$

при полученном значении $E_{des} = 2.1 \pm 0.05$ эВ. Эти зависимости показаны на рис. 6 (треугольники). Из рис. ба видно, что t_s медленнее растет с увеличением L, чем для выглаживания поверхности без переноса атомов через газовую фазу. Это означает, что вклад массопереноса через газовую фазу возрастает с увеличением ширины террас. При малых значениях ширины террас, сравнимых с длиной диффузии атомов, разница между временами выглаживания с учетом и без учета переноса атомов через газовую фазу отсутствует. Из рис. ба также видно, что время выглаживания приблизительно пропорционально квадрату ширины террасы (пунктирная линия), но это может быть случайным совпадением с зависимостью, предсказанной моделью случайных блужданий. Экстраполяция зависимости $E_d(L)$ до экспериментальной ширины террас L = 1.25 мкм дает энергию активации диффузии $E_d = 1.3 \pm 0.05$ эВ.

3.5. Сравнение параметров модели выглаживания поверхности GaAs(001) с литературными данными

Интересно сравнить значения энергии активации диффузии и энергии латеральных связей, полученные в настоящей работе, с величинами, определенными из независимых экспериментов и расчетов из первых принципов. Известные из литературы эксперименты и моделирование Монте-Карло молекулярно-лучевой эпитаксии GaAs(001) дают широкий диапазон E_d от 1.3 эВ до 4.0 эВ для различных реконструкций поверхности (см. п. 1.4). В частности, для реконструкции (2 × 4) $E_d = 1.4$ [23] – 1.6 эВ [21] и для реконструкции (1 × 1) $E_d = 4.0$ эВ [68]. Таким образом, полученное в данной работе значение энергии активации диффузии $E_d = 1.3 \pm 0.05$ эВ попадает в диапазон значений E_d , известных из литературы для поверхности GaAs(001), и близко к значениям, определенным для реконструкции (2 × 4). Известно, что процессы массопереноса на поверхности GaAs(001)

лимитированы переносом атомов Ga (см. п. 1.4), поэтому полученные значения параметров можно отнести к диффузии галлия. В отличие от экспериментов по выращиванию [84] и термическому выглаживанию [15] поверхности слоев GaAs, проводившихся при высоких давлениях мышьяка в ростовых камерах установок молекулярно-лучевой эпитаксии, в работах [13,14] выглаживание проводилось в установке жидкофазной эпитаксии, в потоке молекулярного водорода, в присутствии насыщенного мышьяком расплава галлия, то есть на галлиевой стороне фазовой диаграммы Ga-As (рис. 1). В этих экспериментах дифракционный контроль реконструкций поверхности не осуществлялся. Тем не менее, можно предположить, что поверхность имела одну ИЗ высокотемпературных Ga-обогащенных реконструкций.

Присутствие водорода также может влиять на атомную структуру поверхности и поверхностную диффузию. Хотя эксперименты приводились в потоке молекулярного водорода [13,14], нельзя исключить, что небольшая доля атомарного водорода, образующегося в результате диссоциации на нагретой поверхности GaAs, существенно влияет на поверхностную реконструкцию и процессы массопереноса [49,51].

Вычисления из первых принципов энергии латеральных связей атомов на поверхности GaAs(001)-с(4 × 4) дают широкий диапазон E_b от 0.2 эВ до 0.5 эВ в зависимости от конкретного положения атома в элементарной ячейке поверхностной реконструкции [71], что затрудняет их сравнение с параметрами модели кристалла Косселя. Сравнение экспериментов по МЛЭ росту с моделированием Монте-Карло дает $E_b = 0.23 - 0.32$ эВ [19,20,21,23], что хорошо согласуется со значениями, полученными в этом исследовании, и средними значениями, полученными в результате *ab initio* расчетов [71].

3.6. Определение отклонения условий отжига GaAs от равновесия

Для определения отклонения условий отжига от равновесия была проведена серия последовательных отжигов и ex situ ACM измерений на образце с литографической меткой. По периметру квадрата размером 5 × 5 мкм² было сделано углубление шириной 100 нм и глубиной 10 нм методом АСМ-индуцированного окисления и последующего удаления Это углубление служило литографической оксида. меткой ЛЛЯ идентификации конкретных моноатомных ступеней после отжигов. На рис. 9 показаны экспериментальные и модельные изображения поверхности с литографической меткой до и после отжигов. Следует отметить, что из-за ограниченных вычислительных ресурсов моделирование проводилось для размеров поверхности И ширины террас на порядок меньше экспериментальных. Видно, что в результате первого отжига на исходных шероховатых поверхностях образуются отдельные террасы, разделенные неровными вицинальными ступенями моноатомной высоты. На террасах сформировались моноатомные островки и озёра. Последующие отжиги приводят к увеличению латеральных размеров и уменьшению концентрации островков и озёр, а также выпрямлению ступеней. В результате трех отжигов поверхность приближается к идеальной ступенчато-террасированной морфологии с системой регулярных атомно-гладких террас, разделенных прямолинейными относительно И равноотстоящими моноатомными ступенями. Ширина террас в эксперименте *L* ~ 1 мкм соответствует углу разориентации подложки $\theta \sim 0.02^{\circ}$.

В эксперименте наблюдается постепенное зарастание углубления при отжигах. В моделировании диффузия, встраивание и выход из ступеней адатомов в углублении были искусственно запрещены, чтобы предотвратить быстрое, по сравнению с экспериментом, зарастание углубления. Дополнительное моделирование показало, что и поверхностная диффузия, и



Рисунок 9. Экспериментальные (a-d) и модельные (f-i) изображения поверхностей с квадратными метками до (a,f) и после (b-d,g-i) последовательных отжигов при 900 К в течение 10 мин (b,g), 30 мин (c,h) и 60 мин (d,i). (e,j) Контуры ступеней после второго (c,h, черные линии) и третьего (d,i, красные линии) отжига, соответственно.

массоперенос через газовую фазу дают вклад в зарастание углубления и "сглаживание" острых углов при пересечениях ступеней с углублением и формирование характерных "прогибов" вблизи пересечений. Размер прогибов в эксперименте доказывает эффективность этих процессов на расстояниях ~ 100 нм в течение 60-минутного отжига.

На рис. 9 видно, что эволюция рельефа поверхности состоит преимущественно в выглаживании мелкомасштабных (≤ 200 нм) неровностей вицинальных ступеней, тогда как крупномасштабные неровности и среднее положение ступеней сохраняются. В случае ступенчато-слоевого роста или сублимации можно было бы ожидать образования плоской бесступенчатой грани, ограниченной литографической меткой, из-за движения ступеней в сторону ниже- или вышележащих террас, соответственно, как это происходит при эпитаксиальном росте на структурированных подложках [45]. Однако, как видно на рис. 9, этого не происходит. Более того, ширина террас в области, верхней И нижней квадратной ограниченной частях литографической меткой, примерно одинакова, и каждая ступень внутри области является продолжением ступени снаружи области. Это означает, что

при отжиге не происходит ни рост, ни сублимация, а условия выглаживания близки к равновесию.

Для более детального анализа положения ступеней, на рис. 9е, ј приведены экспериментальные (рис. 9c,d) и модельные (рис. 9h,i) контуры ступеней, соответственно. На модельных изображениях (рис. 9j) нет сдвига ступеней, поскольку потоки атомов с поверхности и на поверхность искусственно уравновешены. В эксперименте (рис. 9е), напротив, наблюдается небольшой, но отчетливый, сдвиг ступеней в сторону нижележащей террасы после третьего отжига. Этот сдвиг соответствует небольшому отклонению условий отжига от равновесия в сторону роста.

Следует отметить, что, хотя сдвиг хорошо виден, для криволинейных ступеней нет однозначного алгоритма оценки величины сдвига. Простой и понятный алгоритм состоит в аппроксимации всех ступеней параллельными линиями методом наименьших квадратов. Для ступеней. прямыми рис. 9е, средний аппроксимирующих показанных на сдвиг линий составляет 130 ± 40 нм в сторону нижележащей террасы. Другой алгоритм состоит в построении векторов между точками исходной ступени и ближайшими точками сдвинутой ступени. Эти векторы показывают локальные направления и величины сдвига ступеней. Из усреднения векторов сдвига, рассчитанных для ступеней, показанных на рис. 9е, получено среднее значение сдвига 110 ± 25 нм в сторону нижележащей террасы, что согласуется с предыдущей оценкой. Таким образом, обе оценки доказывают статистическую значимость сдвига ступеней в эксперименте. Для модельных ступеней, показанных на рис. 9j, оба алгоритма показали отсутствие сдвига ступеней в пределах статистической погрешности, как и ожидалось.

По измеренному сдвигу ступеней сделана оценка избыточного потока атомов галлия $\Delta V \approx 1.5 \times 10^{-4}$ MC/c в предположении, что длина диффузии адатомов $L_{\rm D}$ имеет тот же порядок величины, что и ширина прогиба ступеней



Рисунок 10. Экспериментальная и модельная кинетика длины ступеней $l_s(t)$. Кинетика, полученная на образце с меткой, показана треугольниками. Кинетика, полученная ранее на разных образцах без меток (хотя и вырезанных из одной подложки), показана кругами. Модельные кинетики, рассчитанные для энергии активации десорбции $E_{des} = 2.1$ эВ и $E_{des} = 1.9$ эВ, показаны штриховой и сплошной линиями соответственно.

при пересечении с углублением (≈ 100 нм). Из избыточного потока ΔV рассчитано избыточное давление паров галлия $\Delta P_{Ga} = \sqrt{2\pi k T M_{Ga}} \Delta V \approx 10^{-7}$ Па и относительное отклонение от равновесия $\sigma = \Delta P_{Ga} / P_{Ga}^{eq} \approx 5 \times 10^{-3}$. Здесь k – постоянная Больцмана, T – температура, M_{Ga} – масса атома галлия, P_{Ga}^{eq} – равновесное давление паров Ga в системе Ga-As [38].

3.7. Уточнение параметров модели

Эксперименты на образце с литографической меткой позволяют уточнить кинетику выглаживания поверхности и скорректировать параметры модели. На рис. 10 воспроизведены кинетика длины ступеней на образцах без литографических меток (круги) [14] и модельная кинетика, рассчитанная для энергии активации диффузии $E_d = 1.3$ эВ, энергии латеральных связей $E_b = 0.32$ эВ и энергии активации десорбции $E_{des} = 2.1$ эВ (пунктирная линия). В отличие от шкалы, использованной на рис. 5, двойная логарифмическая шкала на рис. 10 подчеркивает отклонение эксперимента от модельной

кинетики при малых временах отжига $t \le 15$ мин. Кинетика длины ступеней, полученная на образце с литографической меткой, показана треугольниками. Видно, что эта кинетика отклоняется от моделирования еще сильнее. Чтобы лучше описать эксперименты моделированием, была скорректирована энергия активации десорбции $E_{des} = 1.9$ эВ. Соответствующая модельная кинетика показана на рис. 10 сплошной линией.

Результаты и выводы к главе 3

1. Термическое выглаживание поверхности GaAs(001) в равновесных условиях описано моделированием Монте-Карло в модели кристалла Косселя. Из сравнения с экспериментами модельной кинетики длины ступеней и размеров островков и озёр определены энергии латеральной связи $E_b = 0.32$ эВ, активации диффузии $E_d = 1.3$ эВ и десорбции $E_{des} = 1.9$ эВ. Для учета разницы в размерах модельных и экспериментальных участков поверхности, моделирование проведено для разных размеров модельной области и разной ширины террас. Энергия активации диффузии определена из экстраполяции до экспериментальной ширины террас L = 1.25 мкм.

2. При температурах отжига $T \le 625^{\circ}$ С величина отклонения от равновесия, оцененная по смещению положения конкретных атомных ступеней, не превышает $\Delta V \le 1.5 \times 10^{-4}$ MC/c. Смещение атомных ступеней определено из анализа экспериментов по термическому выглаживанию поверхности с литографической меткой.

Глава 4. Анизотропия рельефа и особенности оствальдовского созревания в процессе формирования ступенчатотеррасированной поверхности

В этой главе обсуждается анизотропия рельефа поверхности в процессе формирования ступенчато-террасированной морфологии (п. 4.2) И особенности оствальдовского созревания островков на вицинальной поверхности (п. 4.3). В начале главы рассмотрено пространственное островков и озёр по разные стороны формирующихся разделение вицинальных ступеней, которое препятствует их рекомбинации.

Результаты, представленные в данной главе, опубликованы в работах [A2, A4–A5, A8].

4.1. Пространственное разделение островков и озёр на террасах

На экспериментальных изображениях поверхности на рис. 4b-c,g-h,l-m видно, что островки и озёра расположены преимущественно вблизи формирующих вицинальных ступеней, на ниже- и вышележащих террасах, соответственно, а средние области террас относительно плоские. На модельных изображениях поверхности разделение поверхности на "плоские" и "шероховатые" (с островками и озёрами) области выражено сильнее по сравнению с экспериментом. Причина разделения островков и озёр формирующимися вицинальными ступенями схематически проиллюстрирована на рис. 11. На рис. 11а показаны сечения исходной шероховатой и выглаженной ступенчато-террасированной поверхности, усредненные вдоль направления вицинальных ступеней. Видно, что для образования ступенчато-террасированной поверхности необходим массоперенос ИЗ правой половины исходного профиля (будущая нижележащая терраса) в левую (будущая вышележащая терраса). На промежуточных стадиях формирования ступенчато-террасированной



Рисунок 11. Формирование ступенчато-террасированной поверхности: эскиз (a) и моделирование (b) усредненного профиля поверхности поперек ступени. На рис. (a) начальный и конечный профили показаны сплошной и пунктирной линиями соответственно. Стрелка указывает направление массопереноса при образовании ступенчато-террасированной поверхности. На рис. (b) высота h измеряется в монослоях, а расстояние по y – в долях ширины террасы L.

поверхности избыток и недостаток материала вблизи вицинальных ступеней на ниже- и вышележащих террасах должны приводить к преимущественному образованию островков и озёр, соответственно. Области вблизи середины террас остаются плоскими из-за "рекомбинации" относительно небольших избытков и недостатков материала.

Модельная профиля поверхности, усредненного ЭВОЛЮЦИЯ ПО направлению ступеней показана на рис. 11b. Видно, что с увеличением продолжительности отжига исходный профиль приближается к моноатомной ступени за счет расширения областей, соответствующих плоским террасам, и сужения областей, прилегающих к ступени, и покрытых островками и озёрами. Резкие изгибы на модельном профиле поверхности соответствуют четким границам между "шероховатыми" (с островками и озёрами) и атомногладкими областями поверхности. Таким образом, выглаживание поверхности происходит путем образования плоских областей вблизи

середины будущих террас. Ширина этих областей постепенно увеличивается, а ширина областей с островками и озёрами, прилегающих к вицинальным ступеням, уменьшается, и поверхность становится ступенчатотеррасированной.

4.2. Кристаллографическая и вицинальная анизотропия рельефа

рис. 12 показана экспериментальная и модельная Ha кинетика формирования ступенчато-террасированной поверхности при отжиге в равновесных условиях. Исходные шероховатые поверхности показаны в левой колонке. Время увеличивается отжига слева направо. Экспериментальные изображения рельефа поверхности GaAs(001) [14] показаны в верхнем ряду. Отжиги проводились на разных образцах размером 4×8 мм², вырезанных из области размером ~ 4 см² подложки GaAs(001). Как следствие, направление вицинальных ступеней и ширина террас варьируются от образца к образцу за счет изменений направления и величины угла разориентации по поверхности подложки (рис. 12c,d). Модельные изображения рельефа поверхности в процессе выглаживания без учета и с учетом анизотропии диффузии показаны в среднем и нижнем рядах, соответственно. Ширина террас и размер модельной поверхности в N = 5 и 8 раз, соответственно, меньше, чем в эксперименте. Таким образом, разница в размерах моделирования и эксперимента значительно уменьшена по сравнению с рис. 4. Сравнение модельных изображений поверхности в среднем и нижнем рядах рис. 12 показывает, что учет анизотропии диффузии приводит к вытянутой форме островков и озёр на террасах и полуостровков на ступенях. Аналогичная анизотропия наблюдается в эксперименте, однако изображениях рельефа поверхности на eë труднее выявить И охарактеризовать.



Рисунок 12. Экспериментальные (a-e) и расчетные (f-o) изображения рельефа поверхности до (a,f,k) и после отжига при температуре 625°C в течение 15 мин (b,g,l), 40 мин (c,h,m), 120 мин (d,i,n) и 480 минут (e,j,o) без учета (f-j) и с учетом (k-o) анизотропии диффузии.

Чтобы более отчетливо выявить и количественно описать анизотропию рельефа поверхности, использовались Фурье- и автокорреляционный анализ. На рис. 13 показаны двумерные Фурье-образы (ФО) экспериментальных и модельных изображений рельефа поверхности, показанных на рис. 12. Аналогично рис. 12, ФО исходных поверхностей показаны в левой колонке, а время отжига увеличивается слева направо. Верхний ряд соответствует ФО экспериментальных изображений рельефа; средний И нижний ряды соответствуют моделированию без учета учетом анизотропии И С поверхностной диффузии. Как и ожидалось, на Фурье-изображениях исходной поверхности виден спектр белого шума, который в эксперименте ограничен разрешением микроскопа (рис. 13а). Формирование и увеличение размеров островков и озёр приводит к сужению спектра до центрального пятна (рис. 13b,g,l) и уменьшению ширины пятна со временем (рис. 13c,h,m).



Рисунок 13. Экспериментальные (a-e) и расчетные (f-o) изображения Фурье-образов рельефа поверхности до (a,f,k) и после отжига при температуре 900 К в течение 15 мин (b,g,l), 40 мин (c,h,m), 120 мин (d,i,n) и 480 мин (e,j,o) без учета (f-j) и с учетом (k-o) анизотропии диффузии. Фурье-образы инвертированы: максимумы Фурье-образов показаны темными пятнами на белом фоне. На вставках показаны центральные части Фурье-образов, увеличенные в два раза и с другими пределами по интенсивности. Темная вертикальная полоса на экспериментальных изображениях (a-e) – это стандартный артефакт, вызванным АСМ сканированием в горизонтальном направлении.

Уменьшение ширины пятна указывает на то, что в процессе формирования ступенчато-террасированной поверхности выглаживаются шероховатости с высокими пространственными частотами, т.е. с малыми латеральными размерами.

На экспериментальных Фурье-образах центральное пятно отчетливо вытянуто вдоль кристаллографического направления [110] (рис. 13b,c). Экспериментально показано, путем изменения направления сканирования по отношению к кристаллографическим осям, что эта анизотропия действительно связана с кристаллографическими осями и не является артефактом, связанным с направлением сканирования АСМ. Анизотропия центрального пятна на рис. 13b, с вызвана, по-видимому, анизотропией диффузии и встраивания в ступени вдоль направлений [110] и [110] на GaAs(001) [14,85]. Для поверхности описания кристаллографической анизотропии в моделировании введена анизотропия энергии активации диффузии вдоль направлений [100] и [010] (рис. 131, m). Оценка этой анизотропии с использованием поперечных сечений автокорреляционной функции рельефа поверхности описана ниже. Из рис. 13g,h видно, что в отличие от эксперимента (рис. 13b,c), до формирования вицинальных ступеней центральные пятна Фурье-изображений, смоделированные без учета кристаллографической анизотропии, почти изотропны с небольшой анизотропией квадратной симметрии. Квадратная симметрия соответствует внутренней кубической анизотропии кристалла Косселя.

На заключительном этапе формирования ступенчато-террасированной морфологии становится видна анизотропия рельефа поверхности, связанная с ступеней: теперь центральные образованием вицинальных пятна на экспериментальных и модельных Фурье-образах вытянуты перпендикулярно (рис. 13d-e,i-j,n-o). ступеням Ha вицинальным вставках показаны увеличенные центральные части Фурье-образов в другом масштабе по чтобы видимым дублет интенсивности, сделать узких пиков, соответствующий вицинальным ступеням (рис. 13b-е,g-j,l-о). Экспериментально измеренное направление вицинальных ступеней и ширина террас, соответствующие углу наклона дублета и обратному расстоянию между пиками, соответственно, варьируются от образца к образцу (рис. 13сd) из-за плавных неровностей поверхности подложки, как указано выше при описании рис. 12.

Некоторые особенности модельных Фурье-изображений отсутствуют в эксперименте. Во-первых, дублет узких пиков, соответствующий вицинальным ступеням, также виден на модельных Фурье-изображениях

исходной шероховатой поверхности (вставки на рис. 13f,k). Это указывает на TO, что шероховатые поверхности, которые получены из идеальных ступенчато-террасированных поверхностей в соответствии с методом, описанным в разделе п. 2.2, имеют скрытую периодичность. Во-вторых, модельное центральное пятно имеет кольцеобразную форму (вставки на рис. 13g-h,l-m). Фурье-изображения обратный показывают период неровностей рельефа поверхности. Поэтому кольцевая форма пятен свидетельствует о меньшей дисперсии расстояний между соседними островками и озёрами в моделировании по сравнению с экспериментом. Эти наблюдения показывают возможности Фурье-анализа по выявлению слабых особенностей рельефа поверхности, которые не видны на изображениях в прямом пространстве.

Чтобы подробнее оценить анизотропию поверхности и исследовать кинетику латеральных размеров шероховатостей, в дополнение к анализу Фурье были рассчитаны двумерные автокорреляционные функции (АКФ) экспериментальных и модельных изображений рельефа поверхности. Результаты показаны на рис. 14, с взаимно однозначным соответствием всех изображений рис. 12. Как и следовало ожидать, автокорреляционная функция исходной поверхности представляет собой дельтаобразный пик (рис. 14a,f,k). Формирование и рост островков при выглаживании поверхности приводят к увеличению ширины пика до среднего размера островков (рис. 14b-c,g-h,l-m). Видно, что центральный пик вытянут вдоль направления [110] из-за кристаллографической анизотропии в эксперименте (рис. 14b-с) и вдоль направления [100] в моделировании с учетом анизотропии диффузии (рис. 141-m). Как и Фурье-образы, автокорреляционные функции показывают "вицинальную" анизотропию поверхности при формировании ступенчатотеррасированный морфологии на последующих этапах выглаживания поверхности. Формирование вицинальных ступеней приводит к образованию на АКФ изображениях полос вдоль направления ступеней на расстоянии,


Рисунок 14. Экспериментальные (a-e) и расчетные (f-o) изображения автокорреляционной функции рельефа поверхности до (a,f,k) и после отжига при температуре 900 К в течение 15 мин (b,g,l), 40 мин (c,h,m), 120 мин (d,i,n) и 480 мин (e,j,o) без учета (f-j) и с учетом (k-o) анизотропии диффузии. Изображения АКФ инвертированы: максимумы АКФ показаны темными пятнами на белом фоне.

равном средней ширине террас (рис. 14с-е,h-j,m-о). Разница в угле наклона и периоде полос на экспериментальных АКФ изображениях (рис. 14с-d) обусловлена разницей в угле наклона и периоде вицинальных ступеней, показанных на рис. 12с-d. После встраивания островков в ступени полосы более становятся отчетливыми, центральная полоса становится а (рис. 14d-e,i-j,n-o). неотличимой Амплитуда OT центрального пика автокорреляционной функции центрального пика равна квадрату среднеквадратичной шероховатости, которая уменьшается в 1.5 – 2 раза при выглаживании поверхности. Уменьшение амплитуды центрального пика не видно на рис. 14, поскольку центральная часть изображений АКФ находится за пределами выбранного диапазона интенсивности.



Рисунок 15. Формирование зернистого фона автокорреляционных функций: исходные изображения (a,c,e) и автокорреляционные функции (b,d,f) одного островка (a-b), 4 островков (c-d) и 10 островков (e-f). Изображения АКФ инвертированы: черные и белые цвета соответствуют максимальным и нулевым значениям автокорреляционной функции, соответственно.

Ha АКФ. соответствующей моделированию без учета кристаллографической анизотропии, центральный пик изотропен (рис. 14gh), но видна анизотропия, обусловленная формированием вицинальных ступеней (рис. 14i-j). Также интересно отметить, ЧТО, В отличие от экспериментальных, модельные АКФ изображения имеют "зернистый" фон. Формирование такого фона проиллюстрировано на рис. 15. Слева показаны модельные плоские поверхности с разным количеством круглых островов Справа одинакового размера. показаны соответствующие автокорреляционные функции. Видно, что один островок (рис. 15а) дает одно пятно на АКФ (рис. 15b). Каждая пара островков центральное на поверхности (например, на рис. 15с) дает пару диаметрально противоположных боковых пятен на АКФ-изображении (рис. 15d). С увеличением числа островков *п* число боковых пятен АКФ увеличивается пропорционально n^2 ; эти пятна перекрываются, и их форма искажается (рис. 15e-f). В результате боковые пятна выглядят как зернистый фон. Зернистый фон не виден на экспериментальных АКФ изображениях, вероятно, из-за большего количества островов, чем в моделировании. Действительно, интенсивность центрального пятна пропорциональна числу островков n, а интенсивность боковых пятен не зависит от n. Если масштаб по интенсивности АКФ изображения выбран так, чтобы поддерживать постоянную интенсивность центрального пятна, интенсивности боковых пятен уменьшаются обратно пропорционально числу островков *n*.

Чтобы количественно изучить поверхностную анизотропию И корреляционную длину рельефа поверхности, были определить проанализированы поперечные сечения автокорреляционных функций. Эти сечения показаны на рис. 16 с взаимно однозначным соответствием всех изображений рис. 12. Как и на рис. 12, 13 и 14, время отжига увеличивается слева направо. Первые три столбца представляют собой поперечные сечения вдоль кристаллографических направлений (x,y), а остальные два столбца – поперечные сечения вдоль (1) и поперек (tr) направления вицинальных ступеней. Обратите внимание на разные масштабы по оси *х* для первых трех столбцов и двух последних столбцов. Автокорреляционные функции исходной поверхности представляют собой дельтаобразные пики (рис. 16a,f,k). После образования островков ширина пиков увеличивается до среднего размера островков и озёр в соответствующих направлениях, и становится видна кристаллографическая анизотропия (рис. 16b,l,m), 3a исключением моделирования без учета анизотропии диффузии (рис. 16g,h). Корреляционная длина λ определена как полуширина на полувысоте центральных пиков на сечениях АКФ. При увеличении размера островков и



Рисунок 16. Экспериментальные (a-e) и модельные (f-o) сечения автокорреляционной функции рельефа поверхности до (a,f,k) и после отжига при температуре 900 К в течение 15 мин (b,g,l), 40 мин (c,h,m), 120 мин (d,i,n) и 480 мин (e,j,o) без учета (f-j) и с учетом (k-o) анизотропии диффузии. (a-c,f-h,k-m) Сечения вдоль кристаллографических направлений. (d-e,i-j,n-o) Сечения вдоль и поперек направления ступеней. λ_x и λ_y - корреляционная длина в кристаллографических направлениях, λ_1 и λ_{tr} – корреляционная длина в доль и поперек направлениях. *L* – ширина террас.

уменьшении их концентрации кристаллографическая анизотропия корреляционной длины на экспериментальных сечениях АКФ становится менее выраженной (рис. 16с).

Можно оценить анизотропию энергии активации диффузии E_d в предположении, корреляционная длина пропорциональна что длине диффузии в соответствующем направлении $L_D = \sqrt{D\tau_{des}}$, где $D = a^2 v_0 e^{-E_d/kT}$ - коэффициент поверхностной диффузии, a = 0.4 нм - постоянная решетки, τ_{des} – среднее время до десорбции адатома. В соответствии с этим $\Delta E_d = 2kT \ln(\lambda_x / \lambda_y),$ где λ_x / λ_y – предположением отношение корреляционных длин в кристаллографических направлениях. Используя экспериментальное значение λ_x / λ_y = 2 при *T* = 900K, получаем $\Delta E_d \approx 0.1$ эВ и энергию активации диффузии $E_d^{110} \approx 1.35 \pm 0.05$ эВ, $E_d^{1\bar{1}0} \approx 1.25 \pm 0.05$ эВ. Полученные значения энергии активации диффузии использовались в чтобы воспроизвести моделировании, экспериментальную кристаллографическую анизотропию. Полученные значения находятся в разумном соответствии с вычислениями из первых принципов, согласно которым $E_d^{110} \approx 1.5$ эВ, $E_d^{1\bar{1}0} \approx 1.2$ эВ [71]. Следует отметить, что процесс GaAs(001) термического выглаживания поверхности лимитирован массопереносом галлия. Микроскопической причиной анизотропии диффузии, по-видимому, является анизотропия рядов димеров Ga на поверхности. В принципе, в модели кристалла Косселя можно учесть анизотропию вероятности выхода адатомов из ступеней [85], введя анизотропию энергии латеральных связей Е_b. Однако из имеющихся экспериментальных данных, к сожалению, нельзя разделить вклады анизотропии энергии активации диффузии и энергии латеральных связей. В моделировании учтена только анизотропия $E_{\rm d}$.

После формирования ступеней, на поперечном сечении АКФ в направлении поперек ступеней появляются боковые пики с периодом, равном ширине террас (рис. 16d-e,i-j,n-o). Также видна небольшая модуляция поперечных сечений в направлении вдоль ступеней (рис. 16d,i-n). Эта модуляция исчезает, когда ступени выпрямляются (рис. 16e,jo). Можно заключить, что модуляция АКФ вдоль направления ступеней вызвана неровностями формы ступеней.

На рис. 17а, b представлены экспериментальная и модельная (с учетом анизотропии диффузии) кинетика корреляционной длины в кристаллографических направлениях и в направлениях вдоль и поперек вицинальных ступеней, соответственно. Существует разумное соответствие между экспериментом и моделированием после умножения модельных значений корреляционной длины на N = 5, чтобы учесть разницу в размерах между экспериментальной и модельной шириной террас. До образования вицинальных ступеней, как и ожидалось, на рис. 17а видна анизотропия корреляционной длины в кристаллографических направлениях λ_x и λ_y . После



Рисунок 17. (а) Кинетика экспериментальной (λ^{exp}) и модельной (λ^{sim}) корреляционной длины вдоль кристаллографических направлений (λ_x и λ_y). (b) То же, что и (а), но вдоль (λ_1) и поперек (λ_{tr}) направления вицинальных ступеней. Модельная корреляционная длина умножена на N = 5, чтобы учесть разницу в размерах между шириной террас в моделировании и эксперименте.

образования ступеней кристаллографическая анизотропия поверхности уменьшается, но не исчезает полностью. Эта остаточная анизотропия означает, что термические флуктуации формы ступеней анизотропны в этих направлениях.

На рис. 17b видно, что до формирования вицинальных ступеней корреляционная длина в направлениях поперек и вдоль ступеней почти изотропна, поскольку кристаллографическая анизотропия исключается выбором направления вицинальных ступеней, близкого к 45° относительно кристаллографических осей. После формирования вицинальных ступеней корреляционная длина в направлениях поперек (λ_{tr}) и вдоль (λ_{l}) ступеней соответствуют амплитуде и периоду неровностей ступеней, соответственно. Видно, что период неровностей больше их амплитуды. После выпрямления ступеней поперечная корреляционная длина λ_{tr} ограничена шириной террасы,

а продольная корреляционная длина λ_1 увеличивается до размера исследуемой области поверхности. Таким образом, отношение λ_1^{exp} и λ_{tr}^{exp} определяется количеством террас на исследуемом участке.

4.3. Особенности оствальдовского созревания на ступенчатотеррасированной поверхности

Как упоминалось выше, на начальном этапе выглаживания формирование и оствальдовское поверхности происходит созревание островов и озёр. Рекомбинация островков и озёр происходит в середине террас, но подавлена их пространственным разделением вблизи ступеней. Это разделение островков и озёр позволяет рассмотреть особенности оствальдовского созревания в присутствии вицинальных ступеней. На плоской поверхности оствальдовское созревание приводит к увеличению размеров крупных островков за счет мелких и, в конечном счете, к образованию одного большого острова [58].

особенностей оствальдовского Для выяснения созревания при формировании ступенчато-террасированной морфологии рассмотрим кинетику размеров островков и озёр. Модельная кинетика среднего диаметра островков и озёр (треугольники) и корреляционной длины, усредненной по кристаллографическим направлениями (круги), показаны на рис. 18а. Простая оценка для случайно расположенных круглых островков или озёр одинакового диаметра d дает корреляционную длину $\lambda \approx 0.4d$. Поэтому, корреляционная длина, показанная на рис. 18а, нормирована на численный коэффициент 0.4.

Видно, что обе кинетики совпадают на начальном этапе выглаживания поверхности. Увеличение латеральных размеров островков и озёр на этом этапе согласуется с теорией оствальдовского созревания $d = At^{1/4}$ для роста многослойных островков, лимитированного диффузией адатомов (рис. 17а,



Рисунок 18. (а) Модельная кинетика корреляционной длины $\lambda(t)$ (нормированной на численный коэффициент 0.4) и среднего диаметра островков и озёр d(t). Линией показана аппроксимация кинетики среднего диаметра теорией оствальдовского созревания [58]. (б) Кинетика покрытия поверхности островками и озёрами $\theta(t)$. Линия проведена для удобства восприятия.

сплошная линия) [58]. Для случая моноатомных островков теория предсказывает $d = At^{1/2}$ [58]. Причина этого несоответствия не ясна. Возможная причина состоит в том, что островка и озёра имеют формы скругленных квадратов или прямоугольников, в то время как теория оствальдовского созревания разработана для случая идеально круглых островков. Относительно прямые края прямоугольных островков и озёр меньшую концентрацию изломов, И ЭТО может замедлить имеют массоперенос между островками и озёрами, что приводит к более медленной кинетике размеров островков и озёр.

При формировании ступенчато-террасированной поверхности вицинальные ступени играют роль стока для островков и озёр. На рис. 18b показана кинетика покрытия поверхности островками и озёрами θ , которое равно общей площади островков и озёр, нормированной на площадь поверхности. Для монослойных островков и озёр покрытие пропорционально

общему числу атомов в островах и недостающих атомов в озёрах. Видно, что на начальном этапе выглаживания поверхности θ изменяется медленно, и это объясняет применимость теории оствальдовского созревания на этом этапе. Быстрое уменьшение θ на следующем этапе соответствует встраиванию островков и озёр в ступени. Наблюдаемое уменьшение средних размеров островков и озёр на этом этапе (рис. 18а) указывает на то, что островки и озёра, встраиваются в ступени за счет выхода из островков, диффузии по террасам и встраивания в ступени адатомов и адвакансий. На рис. 18а также при видно. ЧТО больших временах отжига корреляционная длина увеличивается, а размер островков и озёр уменьшается. Это вызвано тем, что формирования ступенчато-террасированной на заключительных этапах морфологии, когда островки и озёра встраиваются в вицинальные ступени, корреляционная длина определяется формой ступеней, а не размерами островков и озёр.

Результаты и выводы к главе 4

1. При формировании ступенчато-террасированной морфологии островки и озёра образуются по краям террас, по разные стороны вицинальных ступеней. Пространственное разделение островков и озёр препятствует их рекомбинации.

2. Кристаллографическая и вицинальная анизотропия рельефа при формировании ступенчато-террасированной поверхности GaAs(001) изучена помощью моделирования Монте-Карло, Фурье-С а также И Показано, что автокорреляционного анализа. вначале выглаживаются наиболее мелкомасштабные неровности, а время выглаживания определяется крупномасштабными неровностями. Из анизотропии корреляционной длины рельефа поверхности сделана оценка анизотропии энергии активации диффузии $\Delta E_{\rm d} \approx 0.1$ эВ.

3. Изучены особенности оствальдовского созревания островков и озёр в присутствии вицинальных ступеней. На начальном этапе выглаживания, увеличение латеральных размеров островков и озёр соответствует оствальдовскому созреванию на сингулярной грани. Последующее уменьшение их размеров связано со "встраиванием" в вицинальные ступени. Островки и озёра встраиваются в ступени за счет выхода адатомов и вакансий, диффузии по террасам и встраивания в ступени.

Глава 5. Разупорядочение рельефа ("огрубление") поверхности

В работе [13] экспериментально показано, ЧТО при высоких температурах $T \ge 700^\circ$ термическое выглаживание GaAs сменяется разупорядочением рельефа ("огрублением") поверхности. Это состоит разупорядочение разрушении ступенчато-террасированной В морфологии и образовании эшелонов ступеней, а также мультислойных островков и озёр. Как обсуждалось в главе 1, причина разупорядочения может состоять в фундаментальном разупорядочивающем переходе [17,15]. Однако, оценка в модели кристалла Косселя показывает, что температура перехода $T_{\rm R} \approx 1925^{\circ}{\rm C}$ должна превышать температуру плавления кристалла $T_{\rm m} = 1240^{\circ}{\rm C}.$

В данной главе приведены: (1) экспериментальные данные, свидетельствующие от том, что в условиях [13,14] разупорядочение рельефа связано с кинетическими неустойчивостями (п. 5.1); (2) качественное объяснение и количественное описание моделированием Монте-Карло процесса образования мультислойных островков и озёр (п. 5.2); (3) сравнение разупорядоченного рельефа вицинальных поверхностей с разной исходной шириной террас (п. 5.3); (4) результаты оптимизации условий выглаживания с учетом высокотемпературного огрубления.

Результаты, представленные в данной главе, опубликованы в работах [А4, А6–А7, А10–А16].

5.1. Экспериментальные результаты по разупорядочению рельефа поверхности GaAs(001)

Чтобы показать, что огрубление поверхности GaAs при повышенных температурах вызвано кинетическими неустойчивостями, два образца GaAs со ступенчато-террасированной поверхностью были отожжены при $T = 775^{\circ}$ С в одном эксперименте. Один из образцов был закрыт пластиной GaAs так,



Рисунок 19. АСМ-изображения исходной ступенчато-террасированной поверхности (a,d), и поверхностей открытого (b,e) и закрытого (c,f) образцов после отжига при $T = 775^{\circ}$ С в течение 2 часов. (g-i) Профили сечения вдоль отрезков, показанных на рис. (d-f).

чтобы между двумя соседними поверхностями GaAs образовалась узкая щель ("капилляр"), а другой оставался открытым. На рис. 19 показаны исходная ступенчато-террасированная поверхность и поверхности образцов после Исходная покрыта небольшими отжига. поверхность моноатомными островками, как видно на рис. 19(d,g). Происхождение этих островков не ясно. Покрытие поверхности островками ~ 10-4 может указывать на то, что образовались островки ИЗ адатомов при охлаждении ДО комнатной температуры. Видно, что после отжига на открытой и закрытой поверхностях образовались многослойные островки (белые точки на рис. 19b) и озёра (черные точки на рис. 19с), соответственно. Крупные островки имеют высоту 15-25 монослоев (MC), мелкие – 5-10 MC (рис. 18e,h). Озёра имеют глубину 5-10 MC (рис. 18f,i). Качественное различие морфологии открытого и закрытого образцов свидетельствует о том, что огрубление поверхности обусловлено кинетическими неустойчивостями, поскольку для термодинамического огрубления следовало бы ожидать некоторой универсальной морфологии разупорядоченной поверхности. Образование островков и озёр можно объяснить отклонением условий отжига от равновесия в сторону сублимации (для открытого образца) или роста (для закрытого образца) на участках поверхности, где сублимация и рост подавлены.

Чтобы уточнить механизмы кинетического огрубления поверхности, были проведены высокотемпературные отжиги ступенчато-террасированных поверхностей GaAs(001) с различной шириной террас. Ширина террас углом разориентации поверхности ($\theta = 0.01 - 0.25^{\circ}$ определяется ДЛЯ образцов в данной работе). Изображения поверхности после отжига показаны на рис. 20. Температура отжига увеличивается слева направо. Ширина террас на исходной поверхности уменьшается сверху вниз, за исключением последнего ряда, в котором показаны увеличенные изображения из Из рис. 20(a,e,i,m) видно, предыдущего ряда. что ступенчатотеррасированная морфология поверхности сохраняется при $T = 650^{\circ}$ C. Увеличение температуры отжига до 700 – 750°С приводит к разрушению ступенчато-террасированной морфологии и образованию эшелонов ступеней (рис. 20f-g,j-k,n-o). Дальнейшее увеличение температуры отжига до 775°С приводит к образованию мультислойных островков (рис. 20d,h,l,p). Хотя скорость сублимации в этих экспериментах не измерялась, её значения, порядку оцененные по высоте островков, одинаковы ПО величины (10⁻³ МС/с). Причина огрубления поверхности при увеличении температуры в том, что потоки атомов с поверхности и на поверхность экспоненциально возрастают при увеличении температуры, и поэтому возрастает разница между ними, приводящая к сублимации или росту поверхности. Из рис. 20(аd) видно, что ступенчато-террасированная морфология сохраняется на поверхности с исходной шириной террас 1.5 мкм. Неправильная, извилистая форма ступеней на рис. 20(а-с) обусловлена вариациями угла разориентации



Рисунок 20. АСМ-изображения ступенчато-террасированных поверхностей с исходной шириной террас 1.5 мкм (a-d), 0.3 мкм (e-h) и 0.07 мкм (i-l) после отжига при 650°С (a,e,i,m), 700°С (b,f,j,n), 750°С (c,g,k,o) и 775°С (d,h,l,p). (m-p) Увеличенные изображения (i-l).

по поверхности подложки. Уменьшение ширины террасы до 0.3 – 0.07 мкм приводит к образованию вытянутых "пальцеобразных" эшелонов ступеней (рис. 20f-g,j-l,n-p) и мультислойных "плато" (рис. 20h).

5.2. Моделирование кинетического разупорядочения

Образование мультислойных островков и озёр можно объяснить обтеканием моноатомными ступенями областей поверхности, на которых сублимация и рост подавлены. Чтобы подтвердить это объяснение, проведено моделирование взаимодействия между движущимися атомными



Рисунок 21. Моделирование прохождения ступеней через центр торможения (белая или черная точка) при сублимации (a-d) и росте (e-h). Ступени движутся снизу вверх при сублимации и сверху вниз при росте, соответственно. *L*_i – длина залива перед отрывом ступени от центра торможения.

ступенями и такой областью. В верхнем ряду рис. 21 показана сублимация ступенчато-террасированной поверхности с одиночной областью в центре, на которой сублимация искусственно запрещена. Видно, что такая область играет роль центра торможения ступеней. Моноатомные ступени движутся снизу вверх (рис. 21а). После приближения к центру торможения ступень обтекает вокруг центра торможения, образуя "залив" (рис. 21b). При дальнейшем движении ступени длина залива L_i увеличивается (рис. 21с) и, в конце концов, ступень отрывается от центра торможения (рис. 21d). Каждый раз, когда моноатомная ступень проходит через центр торможения, высота центра торможения увеличивается на один монослой (МС) по отношению к сублимации понизившемуся при уровню террасы. Таким образом, мультислойные островки образуются при сублимации поверхности.

Образование мультислойных озёр при росте происходит аналогично. В нижнем ряду рис. 21 показан рост на ступенчато-террасированной поверхности с одиночной областью в центре, на которой рост искусственно запрещен. Моноатомные ступени движутся сверху вниз (рис. 21е). Ступень обтекает вокруг центра торможения, образуя "залив" (рис. 21f), длина



Рисунок 22. Модельная зависимость максимальной длины заливов *L*_i от скорости роста (круги) и сублимации (треугольники) *V*. Штриховой линией показан переход от ступенчато-слоевого механизма роста к островковому.

которого L_i увеличивается со временем (рис. 21g), и отрывается от центра торможения (рис. 21h). Каждый раз, когда моноатомная ступень проходит через центр торможения, глубина центра торможения увеличивается на один монослой по отношению к повысившемуся при росте уровню террасы.

Несмотря на качественное сходство ("симметрию") между ростом и сублимацией, из рис. 21 видна существенная количественная разница в длине залива. Чтобы прояснить разницу между огрублением поверхности при сублимации и росте, проведено моделирование "кинетического" огрубления при различной скорости сублимации и роста. На рис. 22 показана длина залива перед отрывом ступени (то есть максимальная длина залива), усредненная по 10 отрывам ступеней. Хотя количественное сравнение моделирования с экспериментом затруднено из-за разной ширины террас, видно, что увеличение скорости сублимации или роста с 10^{-4} MC / с до 10^{-2} MC / с приводит к уменьшению длины залива в ~ 4 раза. Это вызвано сужением залива до размера центра торможения при увеличении скорости сублимации или роста. Узкий залив легко разрушается, и ступень отрывается от центра торможения раньше.

На рис. 22 видно, что при росте длина залива в ~ 2 раза больше, чем при сублимации с той же скоростью. Качественное объяснение разницы длины заливов состоит в следующем. Перенос вещества адатомами играет главную роль в формировании залива, поскольку концентрация адвакансий в 3-5 раз ниже концентрации адатомов. В частности, перенос вещества адатомами вдоль ступени делает залив шире и, таким образом, препятствует его разрушению. При сублимации максимальная длина залива меньше из-за меньшей концентрации адатомов по сравнению с ростом. Эта закономерность подтверждается в эксперименте: из рис. 19с, f видно, что отчетливо выраженные заливы наблюдаются при росте, в отличие от сублимации (рис. 19b,e). Скорости сублимации и роста, оцененные по высоте островков и глубине озёр, составляют $3 \times 10^{-3} \text{ MC} / \text{ c}$ и $1 \times 10^{-3} \text{ MC} / \text{ c}$, соответственно. В этих условиях заливы на открытом образце должны быть в ~ 2 раза короче, чем на закрытом образце.

Происхождение областей поверхности, которые развиваются В мультислойные островки или озёра и вызывают эшелонирование ступеней, не ясно. Росту и сублимация могут препятствовать загрязнения поверхности. Однако при меньших температурах отжига загрязнений на поверхности не наблюдается. Более того, увеличение температуры отжига должно приводить не к загрязнению поверхности, а к очистке, как это происходит, например, на кремнии [10]. С другой стороны, частицы моноатомной высоты могут быть не видны в АСМ до тех пор, пока они не превратятся в мультислойные островки или озёра при отклонении от равновесия при более высоких температурах отжига. Другое возможное происхождение этих областей образование галлия поверхности GaAs. поверхности капель на Действительно, выглаживание поверхности сменяется огрублением в интервале $T = 650 - 700^{\circ}$ С, что близко к температуре температурном конгруэнтного испарения GaAs(001) $T_c = 640 - 650^{\circ}C$ [37,38]. Капли галлия, вероятно, закрепляются на поверхности за счет частичного растворения

поверхности GaAs [41,42] и могут играть роль областей поверхности, на которых подавлены рост и сублимация.

5.3. Особенности огрубления поверхности с разной шириной террас

Чтобы воспроизвести экспериментально наблюдаемую морфологию разупорядоченных поверхностей с различной шириной террас, проведено моделирование взаимодействия между движущимися атомными ступенями и случайно расположенными центрами торможения. Моделирование показало, что образованию мультислойных эшелонов ступеней вблизи центров торможения препятствует обмен атомами между ступенями. Когда две ступени приближаются друг к другу, атомы отрываются от верхней ступени, перемещаются по террасе между ступенями и встраиваются в нижнюю ступень. Это приводит к эффективному отталкиванию ступеней, которое предотвращает эшелонирование.

Чтобы уменьшить массоперенос через ступени, был введен барьер Швёбеля *E*_S между ступенью и вышележащей террасой. Для оценки величины барьера Швёбеля, необходимого для эшелонирования ступеней на огрубление центрах торможения, моделировалось ступенчатотеррасированной поверхности с относительно небольшой шириной террас (эквивалентной $L \approx 0.07$ мкм). На рис. 23 показаны рост (верхний ряд) и сублимация (нижний ряд) ступенчато-террасированной поверхности с одинаково расположенными центрами торможения. Барьер Швёбеля увеличивается слева направо. На поверхностях без барьера Швёбеля нет эшелонов ступеней, хотя форма ступеней вблизи центров торможения искажена (рис. 23а,е). Барьер Швёбеля $E_{\rm S} = 0.2$ эВ приводит к образованию эшелонов ступеней высотой 3-5 MC, которые видны как локальные отклонения высоты поверхности от средней плоскости (более яркие и темные



Рисунок 23. Модельные изображения поверхности с одинаковым положением центров торможения после сублимации (a-d) и роста (e-h) при различных значениях барьера Швёбеля: a,e) нет барьера; b,f) $E_{\rm S} = 0.2$ эB; c,g) $E_{\rm S} = 0.4$ эB; d,h) $E_{\rm S} = 0.6$ эB.

области на рис. 23b,f, соответственно). Увеличение барьера Швёбеля до $E_{\rm S} = 0.4$ эВ приводит к увеличению высоты эшелонов ступеней до 5 – 10 МС (рис. 23с,g). При этом большинство ступеней остановились на центрах торможения и, таким образом, вошли в состав эшелонов. Дальнейшее увеличение барьера до $E_{\rm S} = 0.6$ эВ не приводит к существенным изменениям морфологии поверхности (рис. 23d,h).

Следует отметить, что для ступенчато-террасированных поверхностей без центров торможения барьер Швёбеля приводит к эшелонированию ступеней при сублимации и предотвращает эшелонирование при росте (см. п. 1.5). Однако, на рис. 23 видно, что случаи сублимации и роста Здесь симметричны. эшелонирование ступеней вызвано центрами торможения, а не барьером Швёбеля, который лишь уменьшает отталкивание ступеней. Таким образом, при наличии центров торможения барьер Швёбеля приводит к эшелонированию ступеней и при сублимации, и при росте, в отличие от ступенчато-слоевой сублимации и роста в отсутствие центров торможения. Нижний предел барьера Швёбеля на поверхности GaAs(001) составляет приблизительно $E_{\rm S} \approx 0.4$ эВ.



Рисунок 24. Экспериментальные (a-c) и модельные (d-f) изображения поверхностей с различной исходной шириной террас в эксперименте: a) L = 1.4 мкм; b) L = 0.3 мкм; c) L = 0.07 мкм. Размеры модельных изображений и ширина террас на порядок меньше, чем в эксперименте из-за ограниченных вычислительных ресурсов. Моделирование проведено для барьера Швёбеля $E_{\rm S} = 0.4$ эВ.

Монте-Карло экспериментом Сравнение моделирования С при различной исходной ширине террас L показано на рис. 24. Экспериментальные изображения поверхности после отжига показаны в верхнем ряду. Скорость сублимации, оцененная по высоте островков, близка $\kappa \Delta V \sim 10^{-3}$ MC/c. Ширина террас на исходных поверхностях уменьшается На рис. 24а видно, направо. что ступенчато-террасированная слева морфология сохраняется на поверхности с относительно широкими островов. террасами. хотя ступени становятся неровными вблизи Уменьшение ширины террас приводит к образованию мультислойных "плато" (рис. 24b) и удлиненных "пальцеобразных" эшелонов ступеней (рис. 24с), окаймленных островками. Причина разрушения ступенчатотеррасированной морфологии для поверхностей с узкими террасами состоит в следующем. Для относительно широких террас ступени проходят через центры торможения свободно, одна за другой. Напротив, для более узких террас, следующая ступень подходит к центру торможения прежде, чем предыдущая ступень оторвется от него, и это приводит к эшелонированию ступеней.

Влияние ширины террас на исходной поверхности на итоговую морфологию подтверждается результатами моделирования Монте-Карло, показанными в нижнем ряду рис. 24. Моделирование проведено для размера поверхности и ширины террас, на порядок меньших, чем в эксперименте. Для моделирования использовался барьер Швёбеля $E_{\rm S} = 0.4$ эВ. Таким образом, ширина террас исходной поверхности является существенным параметром, определяющим разупорядоченный рельеф поверхности. Отсутствие видимых образце открытом на рис. 19b объясняется террас И заливов на эшелонированием ступеней на центрах торможения.

5.4. Оптимизация условий термического выглаживания GaAs(001)

Возможность получения ступенчато-террасированной поверхности GaAs при отжиге в равновесных условиях была экспериментально показана только для подложек с достаточно малой исходной среднеквадратичной шероховатостью $\rho_{\rm rms} \leq 0.15$ нм [13,14]. Однако существует необходимость выглаживания поверхностей подложек и эпитаксиальных пленок с большей исходной шероховатостью. Очевидно, что выглаживание более шероховатых поверхностей требует более высоких температур, поскольку скорость массопереноса вдоль поверхности экспоненциально растет с температурой, или более длительных отжигов. Разупорядочение рельефа поверхности GaAs отжига и, следовательно. ограничивает температуру и длительность эффективность термического выглаживания шероховатых поверхностей. Чтобы обойти это ограничение, можно использовать двухэтапный отжиг. На первом этапе проводится отжиг при высокой температуре в течение короткого времени, чтобы эффективно выгладить относительно крупномасштабные шероховатости и при этом не допустить огрубления

рельефа за счет кинетических неустойчивостей. На втором этапе, для выглаживания мелкомасштабных шероховатостей, в том числе образовавшихся на первом этапе, проводится отжиг при низкой температуре, ниже порога разупорядочения рельефа поверхности.

Эмпирический поиск оптимальных условий для двухэтапного выглаживания является трудоемким и времязатратным из-за большого количества неизвестных параметров (две температуры и две длительности отжигов). Поэтому, на начальном этапе определения оптимальных параметров двухэтапного отжига использовалось моделирование термического выглаживания методом Монте-Карло. На рис. 25а показаны модельные кинетики длины ступеней для различных температур отжига. Время выглаживания отмечено стрелками. Равновесная длина ступеней как функция времени отжига показана на рис. 25b. В температурном диапазоне 525°С – 725°С равновесная длина степеней увеличивается на 20% с ростом температуры из-за тепловых флуктуаций формы ступени. В то же время, увеличение температуры на 100° С ускоряет выглаживание на 1-2 порядка. Из рис. 25 видно, что использование двухэтапного отжига позволяет значительно уменьшить время, необходимое для получения заданной равновесной длины ступеней. Например, для достижения длины ступеней $l_{\rm S} \approx 1.2$ нужен одноэтапный отжиг при 525°C в течение ~ 4000 мин (около 60 ч) или двухэтапный отжиг при 725°С и 525°С общей длительностью 20 мин.

Температура и длительность первого этапа двухэтапного отжига быть достаточными выглаживания должны для крупномасштабных ("грубых") неровностей поверхности. Как показало моделирование, первый этап термического выглаживания поверхности нужно проводить при максимальной возможной температуре. В эксперименте температура отжига ограничена разупорядочением поверхности, которое начинается при температурах *T* ~ 725°C. Поэтому для первого этапа отжига была выбрана



Рисунок 25. Моделирование Монте-Карло одно- и двухэтапного термического выглаживания поверхности: кинетика длины ступеней $l_s(t)$ (а) и равновесная длина ступеней как функция времени выглаживания $l_s^{eq}(t_s)$ (b). Стрелками отмечено время выглаживания, соответствующее приходу длины ступеней к равновесному значению. Для двухэтапного выглаживания указаны температуры обоих этапов.

температура T = 725°С. В моделировании при такой температуре поверхность выглаживается за 5 – 10 мин. Эксперименты показали, что эта температура, с одной стороны, достаточна для эффективного выглаживания поверхности со среднеквадратичной шероховатостью $\rho_{\rm rms} \sim 0.2$ нм за ~ 15 мин и, с другой стороны, не настолько высока, чтобы за это время поверхность разупорядочилась.



Рисунок 26. АСМ-изображения исходной шероховатой поверхности (a,f), поверхности после отжига при $T = 625^{\circ}$ C (b,g) в течение часа и поверхности после двухэтапного отжига: 15 мин при $T = 725^{\circ}$ C и 1 ч при $T = 625^{\circ}$ C (c,h).

Сравнение предварительных экспериментальных результатов двух- и одноэтапного отжига показано на рис. 26. В верхнем ряду показаны АСМизображения участков поверхности размером 5 х 5 мкм², дающие общее рельефе поверхности. В представление 0 нижнем ряду показаны увеличенные изображения 1 х 1 мкм², на которых лучше видна форма ступеней. Видно, что одноэтапного отжига при 625°С в течение часа недостаточно для формирования ступенчато-террасированной поверхности с прямолинейными ступенями (рис. 26b,g). Не все островки и озёра встроились в вицинальные ступени, а сами ступени имеют извилистую форму с характерным размером неровностей, близким к размерам островков и озёр. Двухэтапный отжиг (15 мин при 725°С и один час при 625°С) дал более совершенную ступенчато-террасированную поверхность (рис. 26с,h), без островков, озёр и мелкомасштабных неровностей на ступенях.

Результаты и выводы к главе 5

1. Разупорядочение рельефа поверхности GaAs при *T* ≥ 700°C вызвано кинетическими неустойчивостями, возникающими при отклонении условий

отжига от равновесия в сторону роста или сублимации. Мультислойные островки и озёра образуются при обтекании ступенями участков поверхности, на которых сублимация и рост подавлены.

2. С помощью моделирования Монте-Карло изучены особенности разупорядочения рельефа вицинальных поверхностей с различной шириной террас. Формирование эшелонов ступеней при малой (≤ 0.3 мкм) ширине террас обусловлено торможением ступеней на мультислойных островках и озерах. Для эшелонирования необходимо наличие барьера Швебеля $E_{\rm S} \geq 0.4$ эВ, подавляющего отталкивание между ступенями.

3. Найдены оптимальные условия двухэтапного термического выглаживания поверхности, состоящего в выглаживании крупномасштабных "грубых" неровностей при высокой температуре и мелких неровностей при меньшей температуре: 15 мин при $T = 725^{\circ}$ С и около 1 ч при $T = 625^{\circ}$ С.

Заключение

В данной работе изучены механизмы термического выглаживания и разупорядочения поверхности GaAs(001) в условиях, близких к равновесию с парами Ga и As с помощью моделирования Монте-Карло и сопоставления моделирования с экспериментами. Основные результаты и выводы состоят в следующем:

1. Методом моделирования Монте-Карло качественно и количественно описаны процессы термического выглаживания поверхности GaAs(001) в равновесных условиях. Из сравнения результатов моделирования с экспериментами определены энергии активации диффузии $E_d = 1.3$ эВ и десорбции адатомов $E_{des} = 1.9$ эВ, а также энергия латеральной связи $E_b = 0.32$ эВ на поверхности GaAs(001).

2. Из анализа экспериментов по термическому выглаживанию поверхности на образцах с литографической меткой, по смещению конкретных атомных ступеней оценена сверху величина отклонения от равновесия при температурах отжига $T \le 625^{\circ}$ C.

3. Методами моделирования Монте-Карло, а также с помощью Фурьеи автокорреляционного анализа изучена анизотропия рельефа при формировании ступенчато-террасированной поверхности GaAs(001). Выявлена кристаллографическая анизотропия рельефа на начальном этапе выглаживания.

4. Изучены особенности оствальдовского созревания в присутствии вицинальных ступеней, разделяющих островки и озёра. Рост средних размеров островков и озёр на начальном этапе выглаживания соответствует оствальдовскому созреванию на сингулярной грани, а последующее уменьшение их размеров связано со встраиванием в ступени.

5. Показано, что разупорядочение рельефа поверхности GaAs при $T \ge 700^{\circ}$ C вызвано развитием кинетических неустойчивостей, возникающих

при отклонении условий отжига от равновесия в сторону роста или сублимации. Формирование мультислойных островков и озёр объяснено обтеканием ступенями участков поверхности, на которых сублимация и рост подавлены.

6. С помощью моделирования Монте-Карло изучены особенности разупорядочения рельефа вицинальных поверхностей с различной шириной террас. Объяснено формирование эшелонов ступеней при малой (≤ 0.3 мкм) ширине террас.

7. Найдены оптимальные условия двухэтапного термического выглаживания поверхности, состоящего в выглаживании крупномасштабных неровностей при высокой температуре и мелких неровностей при меньшей температуре.

Работа лаборатории выполнена в неравновесных процессов В полупроводниках ИФП СО РАН. Автором усовершенствована программа моделирования эволюции рельефа поверхности кристалла методом Монте-Карло. Это позволило промоделировать выглаживание в равновесных условиях, на порядок увеличить скорость счета и площадь моделируемого участка поверхности кристалла. Лично автором проведены моделирование выглаживания и огрубления поверхности, обработка и анализ результатов, а также сравнение с экспериментом на GaAs; предложен и реализован способ перенормировки параметров, учитывающий разницу масштабов поверхности в эксперименте и моделировании. Обсуждение результатов и написание статей проводилось совместно с соавторами опубликованных работ. Автор представлял результаты на 7 российских и международных ЛИЧНО конференциях.

В заключение хотелось бы выразить благодарность заведующему лаборатории неравновесных процессов в полупроводниках ИФП СО РАН Александру Сергеевичу Терехову, которому принадлежит идея термического выглаживания поверхности GaAs в равновесных условиях, Виталию

Львовичу Альперовичу за научное руководство и поддержку, Игорю Олеговичу Ахундову и Нине Сергеевне Рудой, которые проводили эксперименты ПО термическому выглаживанию И разупорядочению поверхности GaAs, сотрудникам ЦКП "Наноструктуры" Антону Сергеевичу Кожухову, Екатерине Евгеньевне Родякиной и Дмитрию Владимировичу Щеглову, которые измеряли рельеф поверхностей методом атомно-силовой микроскопии, Наталье Львовне Шварц, под руководством которой была разработана программа для моделирования поверхности кристалла методом Монте-Карло, и Александру Николаевичу Карпову за помощь в освоении нового (для автора) языка программирования и усовершенствовании программы для моделирования Монте-Карло, Александру Ивановичу Торопову и Алексею Владимировичу Ненашеву за полезные обсуждения результатов работы, всем соавторам опубликованных работ, а также сотрудникам лаборатории неравновесных процессов в полупроводниках ИФП СО РАН за конструктивное сотрудничество, помощь в работе, ценные советы и поддержку.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты 14-02-00352 и 16-32-00220) и Российского научного фонда (грант 14-22-00143).

Публикации по теме работы

- [A1] D.M. Kazantsev, I.O. Akhundov, A.N. Karpov, N.L. Shwartz, V.L. Alperovich, A.V. Latyshev. Monte Carlo simulation of GaAs smoothing in equilibrium conditions. // 21th Int. Symp. Nanostructures: Physics and Technology. St.Petersburg, 2013. p. 279 280.
- [А2] Д.М. Казанцев, И.О. Ахундов, В.Л. Альперович, А.Н. Карпов, А.С. Терехов. Н.Л. Шварц, А.С. Кожухов, А.В. Латышев, Формирование поверхностей GaAs с атомно-гладкими террасами и моноатомными ступенями: эксперимент Монте-Карло И XVIII моделирование. // Труды Международного симпозиума "Нанофизика и наноэлектроника". Нижний Новгород, 2014. - с. 390.
- [A3] D.M. Kazantsev, I.O. Akhundov, A.N. Karpov, N.L. Shwartz, V.L. Alperovich, A.S. Terekhov, A.V. Latyshev. Monte Carlo simulation of GaAs(001) surface smoothing in equilibrium conditions. // Appl. Surf. Sci. 2015. V. 333. P. 141 146. doi:10.1016/j.apsusc.2015.01.226
- [A4] Д.М. Казанцев, И.О. Ахундов, Н.Л. Шварц, В.Л. Альперович, А.С. Терехов, А.В. Латышев. Выглаживание и разупорядочение ступенчато-террасированной поверхности GaAs: эксперимент и Монте-Карло моделирование. // Тезисы докладов XII Российской конференции по физике полупроводников. Звенигород, 2015. – с. 148.
- [A5] D.M. Kazantsev, I.O. Akhundov, N.L. Shwartz, V.L. Alperovich, A.V. Latyshev. Anisotropy in Ostwald ripening and step-terraced surface formation on GaAs(001): experiment and Monte Carlo simulation. // Appl. Surf. Sci. – 2015. – V. 359. – P. 372 –379. doi:10.1016/j.apsusc.2015.10.074
- [А6] Д.М. Казанцев, И.О. Ахундов, Н.Л. Шварц, В.Л. Альперович,
 А.В. Латышев. Разупорядочение ступенчато-террасированной поверхности GaAs: эксперимент и Монте-Карло моделирование. //

Материалы XX Международного симпозиума "Нанофизика и наноэлектроника". Нижний Новгород, 2016. – с. 598 – 599.

- [А7] Д.М. Казанцев, И.О. Ахундов, А.С. Кожухов, В.Л. Альперович. Термодинамическое и кинетическое разупорядочение: моделирование Монте-Карло и эксперимент на GaAs. // Тезисы докладов XVIII Всероссийской молодежной конференции по физике полупроводников и наноструктур, полупроводниковой опто- и наноэлектронике. Санкт-Петербург, 2016. – с. 19.
- [A8] V.L. Alperovich, I.O. Akhundov, D.M. Kazantsev, N.S. Rudaya, E.E. Rodyakina, A.S. Kozhukhov, D.V. Sheglov, A.N. Karpov, N.L. Shwartz, A.S. Terekhov, A.V. Latyshev. Formation of GaAs step-terraced surfaces by annealing in equilibrium conditions // Advances in Semiconductor Nanostructures: Growth, Characterization, Properties and Applications. Elsevier, 2016. p. 255–277.
- [A9] I.O. Akhundov, D.M. Kazantsev, V.L. Alperovich, D.V. Sheglov, A.S Kozhukhov, A.V. Latyshev. Local monitoring of atomic steps on GaAs(001) surface under oxidation, wet removal of oxides and thermal smoothing. // Appl. Surf. Sci. – 2017. – V. 406. – P. 307 – 311. doi:10.1016/j.apsusc.2017.02.062
- [A10] D.M. Kazantsev, I.O. Akhundov, A.S. Kozhukhov, V.L. Alperovich. Thermodynamic and kinetic roughening: Monte Carlo simulation and experiment on GaAs. // J. Phys. Conf. Ser. – 2017. – V. 816. – P. 012008. doi:10.1088/1742-6596/816/1/012008
- [A11] V.L. Alperovich, D.M. Kazantsev, I.O. Akhundov, A.S. Kozhukhov, A.V. Latyshev. Thermal smoothing and roughening of semiconductor surfaces: experiment on GaAs and Monte Carlo simulation. // 25th Int. Symp. Nanostructures: Physics and Technology. St. Petersburg, 2017. – p. 256 – 258.

- [А12] Д.М. Казанцев, И.О. Ахундов, А.С. Кожухов, В.Л. Альперович, А.В. Латышев. Кинетическое огрубление рельефа поверхности GaAs: эксперимент и Монте-Карло моделирование. // Тезисы докладов XIII Российской конференции по физике полупроводников. Екатеринбург, 2017. – с. 89.
- [А13]И.О. Ахундов, Д.М. Казанцев, А.С. Кожухов, В.Л. Альперович. Оптимизация условий термического выглаживания поверхности арсенида галлия. // Тезисы докладов XIX Всероссийской молодежной конференции по физике полупроводников И наноструктур, полупроводниковой опто- и наноэлектронике. Санкт-Петербург, 2017. -c. 17.
- [A14]I.O. Akhundov, D.M. Kazantsev, A.S. Kozhuhov, V.L. Alperovich. Optimization of conditions for thermal smoothing GaAs surfaces. // J. Phys. Conf. Ser. – 2018. – V. 993. – P. 012010. <u>doi:10.1088/1742-6596/993/1/012010</u>
- [A15] D.M. Kazantsev, I.O. Akhundov, V.L. Alperovich, N.L. Shwartz, A.S. Kozhukhov, A.V. Latyshev. Thermal smoothing and roughening of GaAs surfaces: experiment and Monte Carlo simulation. // Semiconductors. - 2018. - V. 52. - P. 618 - 621. doi:10.21883/FTP.2018.05.45858.47
- [A16] D.M. Kazantsev, I.O. Akhundov, N.L. Shwartz, V.L. Alperovich, A.V. Latyshev. Thermal roughening of GaAs surface: experiment and Monte Carlo simulation. // Abstracts of 34th international conference on the physics of semiconductors. Montpellier, France, 2018.

www.icps2018.org/en/program/abstract

Литература

- J. Li, W.-D. Schneider, R. Berndt, S. Crampin. Electron confinement to nanoscale Ag islands on Ag(111): a quantitative study. // Phys. Rev. Lett. – 1998. – V. 80. – P. 3332 – 3335.
- B.C. Stipe, M.A. Rezaei, W. Ho. Inducing and viewing the rotational motion of a single molecule. // Sci. Rep. – 1998. – V. 279. – P. 1907 – 1909.
- F.E. Kalff, M.P. Rebergen, E. Fahrenfort, J. Girovsky, R. Toskovic, J.L. Lado, J. Fernandez-Rossier, A.F. Otte. A kilobyte rewritable atomic memory. // Nat. Nanotechnol. Lett. – 2016. – V. 11. – P. 926 – 930.
- 4. R. Drost, T. Ojanen, A. Harju, P. Liljeroth. Topological states in engineered atomic lattices. // Nat. Phys. Lett. 2017. V. 13. P. 668 672.
- S. Karkare, I. Bazarov. Effects of surface nonuniformities on the mean transverse energy from photocathodes. // Phys. Rev. Appl. – 2015. – V. 4. – P. 024015
- 6. C. Teichert. Self-organization of nanostructures in semiconductor heteroepitaxy.
 // Phys. Rep. 2002. V. 365. P. 335 432.
- F. Xu, P.W. Huang, J.H. Huang, W.N. Lee, T.S. Chin, H.C. Ku, Y.W. Du. Self-assembly and magnetic properties of MnAs nanowires on GaAs(001) substrate.
 // J. Appl. Phys. 2010. V. 107. P. 063909.
- M.F. Crommie, C.P. Lutz, D.M. Eigler. Confinement of electrons to quantum corrals on a metal surface. // Science. 1993. V. 262. P. 218 220.
- 9. M. Kawamura, N. Paul, V. Cherepanov, B. Voigtlander. Nanowires and nanorings at the atomic level. // Phys. Rev. Lett. 2003. V. 91. P. 096102.
- A.V. Latyshev, A.L. Aseev, A.B. Krasilnikov, S.I. Stenin. Transformations on clean Si(111) stepped surface during sublimation. // Surf. Sci. – 1989. – V. 213. – P. 157 – 169.

- H.C. Jeong, E.D. Williams. Steps on surfaces: experiment and theory. // Surf. Sci. Rep. – 1999. – V. 34. – P. 171 – 294.
- Y. Fan, I. Karpov, G. Bratina, L. Sorba, W. Gladfelter, A. Franciosi. Atomic scale roughness of GaAs(001)2×4 surfaces. // J. Vac. Sci. Technol. B. 1996. V. 14. P. 623 631.
- 13. V.L. Alperovich, I.O. Akhundov, N.S. Rudaya, D.V. Sheglov, E.E. Rodyakina, A.V. Latyshev, A.S. Terekhov. Step-terraced morphology of GaAs(001) substrates prepared at quasiequilibrium conditions. // Appl. Phys. Lett. 2009. V. 94. P. 101908.
- I.O. Akhundov, V.L. Alperovich, A.V. Latyshev, A.S. Terekhov. Kinetics of atomic smoothing GaAs(001) surface in equilibrium conditions. // Appl. Surf. Sci. – 2013. – V. 269. – P. 2 – 6.
- 15. Z. Ding, D.W. Bullock, P.M. Thibado, V.P. LaBella, K. Mullen. Atomic-scale observation of temperature and pressure driven preroughening and roughening.
 // Phys. Rev. Lett. 2003. V. 90. P. 216109.
- 16. J.E. Epler, T.A. Jung, H.P. Schweizer. Evolution of monolayer terrace topography on (100) GaAs annealed under an arsine hydrogen ambient. // Appl. Phys. Lett. – 1993. – V. 62. – P. 143 – 145.
- 17. J. Lapujoulade. The roughening of metal surfaces. // Surf. Sci. Rep. 1994. –
 V. 20. P. 191 249.
- A. Pimpinelli, J. Villain. Physics of crystal growth. Cambridge University Press, 1998. – 377 p.
- T. Shitara, D.D. Vvedensky, M.R. Wilby, J. Zhang, J.H. Neave, B.A. Joyce. Step-density variations and reflection high-energy electron-diffraction intensity oscillations during epitaxial growth on vicinal GaAs(001). // Phys. Rev. B. – 1992. – V. 46. – P. 6815 – 6824.
- 20. P. Smilauer, D.D. Vvedensky. Step-edge barriers on GaAs(001). // Phys.
 Rev. B. 1993. V. 48. P. 17603.

- 21. A. Ishii, T. Kawamura, Monte Carlo simulation of homoepitaxial growth on two-component compound semiconductor surfaces. // Surf. Sci. 1999. V. 436. P. 38 50.
- 22. T. Kawamura, A. Ishii. Monte Carlo simulation of recovery process after MBE growth on GaAs(100). // Surf. Sci. 2001. V. 493. P. 438 446.
- 23. M. Itoh. Atomic-scale homoepitaxial growth simulations of reconstructed III– V surfaces. // Prog. Surf. Sci. – 2001. – V. 66. – P. 53 – 153.
- 24. A. Ohtake. Surface reconstructions on GaAs(001). // Surf. Sci. Rep. 2008. –
 V. 63. P. 295 293.
- 25. К. Оура, В.Г. Лифшиц, А.А. Саранин, А.В. Зотов, М. Катаяма. Введение в физику поверхности, М.: Наука, 2005. 499 с.
- 26. O.E. Tereshchenko, S.I. Chikichev, A.S. Terekhov. Composition and structure of HCl-isopropanol treated and vacuum annealed GaAs(100) surfaces. // J. Vac. Sci. Technol. A. – 1999. – V. 17. – P. 2655 – 2662.
- 27. Э. Зенгуил. Физика поверхности: Пер. с англ. М.: Мир, 1990. 536 с.
- 28. Я.И. Френкель. О поверхностном ползании частиц у кристаллов и естественной шероховатости кристаллических граней. // ЖЭТФ. – 1946. – V. 16. – Р. 39 – 52.
- 29. W.K. Burton, N. Cabrera, P.C. Frank. The growth of crystals and the equilibrium structure of their surfaces, Phil. Trans. Roy. Soc. London. Ser. A. 1951. V. 243. P. 299 358.
- Р.А. Сурис. Я.И. Френкель о реальной поверхности кристаллов. // УФН. 1994. – V. 164. – Р. 348 – 352.
- P.A. Arutyunov, A.L. Tolstikhina. Phenomenological description of surface characteristics measured by the method of atomic force microscopy. // Cryst. Rep. – 1998. – V. 43. – P. 483 – 492.
- 32. Y. Zhao, G.-C Wang, T.-M. Lu. Characterization of amorphous and crystalline rough surface: principles and applications // R. Celotta, T. Lucatorto.

Experimental methods in the physical sciences. – V. 37. Academic Press, 2001. – 417 p.

- 33. S.M. Goodnick, D.K. Ferry, C.W. Wilmsen, Z. Liliental, D. Fathy,
 O.L. Krivanek. Surface roughness at the Si(100)-SiO₂ interface. // Phys. Rev. B.
 1985. V. 32. P. 8171 8186.
- 34. C.J. Walsh, A.J. Leistner, B.F. Oreb. Power spectral density analysis of optical substrates for gravitational-wave interferometry. // Appl. Opt. – 1999. – V. 38. – P. 4790 – 4801.
- D.A. Allwood, S. Cox, N.J. Mason, R. Young, P.J Walker. Monitoring epiready semiconductor wafers. // Thin Solid Films. 2002. V. 412. P. 76 83.
- 36. D. Sadowska, A. Gladki, K. Mazur, E. Talik. Optimisation of the epi-ready semi-insulating GaAs wafer preparation procedure. // Vacuum. – 2003. – V. 72. – P. 217 – 223.
- 37. C. Chatillon, I. Ansara, A. Watson, B.B. Argent. Re-assessment of the thermodynamic properties and phase diagram of the Ga-As and In-As systems.
 // Calphad. 1990. V. 14. P. 203 214.
- 38. C. Chatillon, D. Chatain. Congruent vaporization of GaAs(s) and stability of Ga(1) droplets at GaAs(s) surface. // J. Cryst. Growth. 1995. V. 151. P. 91 101.
- 39. K. Shorlin, M. Zinke-Allmang. Shape cycle of Ga clusters on GaAs during coalescence growth. // Surf. Sci. – 2007. – V. 601. – P. 2438 – 2444.
- 40. J. Tersoff, D.E. Jesson, W.X. Tang. Running droplets of gallium from evaporation of gallium arsenide. // Science. 2009. V. 324. P. 236 238.
- 41. Zh.M. Wang, B.L. Liang, K.A. Sablon, G.J. Salamo. Nanoholes fabricated by self-assembled gallium nanodrill on GaAs(100). // Appl. Phys. Lett. 2007. V. 90. P. 113120.

- 42. A. Stemmann, Ch. Heyn, T. Koppen, T. Kipp, W. Hansen. Local droplet etching of nanoholes and rings on GaAs and AlGaAs surfaces. // Appl. Phys. Lett. – 2008. – V. 93. – P. 123108.
- 43. В.В. Преображенский, М.А. Путято, Б.Р. Семягин. Контроль параметров процесса молекулярно-лучевой эпитаксии GaAs при низких температурах роста. // ФТП. – 2002. – V. 36. – Р. 897 – 900.
- 44. Ю.Г. Галицын, Д.В. Дмитриев, В.Г. Мансуров, С.П. Мощенко, А.И. Торопов. Роль латерального взаимодействия в гомоэпитаксии GaAs на поверхности (001)-β(2×4). // Письма в ЖЭТФ. 2007. V. 86. Р. 553 557.
- 45. H. Weishart, E. Bauser, M. Konuma, H.-J. Queisser. Monomolecular steps of ultra-low density on (100) growth faces of liquid phase epitaxial GaAs. // J. Cryst. Growth. – 1994. – V. 137. – P. 335 – 346.
- 46. K. Ohkuri, J. Ishizaki, S. Hara, T. Fukui. Multiatomic step formation on GaAs(001) vicinal surfaces during thermal treatment. // J. Cryst. Growth. 1996. V. 160. P. 235 240.
- 47. M. Tmar, A. Gabriel, C. Chatillon, I. Ansara. Critical analysis and optimization of the thermodynamic properties and phase diagrams of the III-V compounds II. The Ga-As and In-As system. // J. Cryst. Growth. 1984. V. 69. P. 421 441.
- 48. И.О. Ахундов. Формирование террасированных поверхностей арсенида галлия в равновесных условиях: Дис. ... к.ф.-м.н., Институт физики полупроводников им. А.В. Ржанова, Новосибирск, 2013.
- 49. L. Li, B.-K. Han, D. Law, M. Begarney, R.F. Hicks. Gallium arsenide and indium arsenide surfaces produced by metalorganic vapor-phase epitaxy. // J. Cryst. Growth. – 1998. – V. 195. – P. 28 – 33.
- 50. I. Kamiya, D.E. Aspnes, H. Tanaka, L.T. Florez, J.P. Harbison, R. Bhat. Surface science at atmospheric pressure: reconstructions on (001) GaAs in
organometallic chemical vapor deposition. // Phys. Rev. Lett. – 1992. – V. 68. – P. 627 – 630.

- 51. A.V. Vasev. Ellipsometric detection of GaAs(001) surface hydrogenation in H₂ atmosphere. // Surf. Sci. 2008. V. 602. P. 1933 1937.
- 52. А.М. Бойко, Р.А. Сурис. Роль одномерной диффузии в модели роста поверхности кристалла Косселя. // ФТП. 2006. V. 40. Р. 372 379.
- 53. И.Л. Алейнер, Р.А. Сурис. Морфологическая стабильность вицинальной поверхности при молекулярной эпитаксии. // ФТП. – 1992. – V. 34. – Р. 1522 – 1540.
- 54. P. Politi, G. Grenet, A. Marty, A. Ponchet, J. Villain. Instabilities in crystal growth by atomic or molecular beams. // Phys. Rep. 2000. V. 324. P. 271 404.
- 55. J. Krug. Four lectures on the physics of crystal growth. // Physica A. 2002
 313. P. 47 82.
- 56. C. Misbah, O. Pierre-Louis, Y. Saito. Crystal surfaces in and out of equilibrium: a modern view. // Rev. Mod. Phys. – 2010. – V. 82. – P. 981 – 1040.
- 57. V.G. Dubrovskii, Yu.Yu. Hervieu. Diffusion-induced growth of nanowires: Generalized boundary conditions and self-consistent kinetic equation. // J. Cryst. Growth. - 2014. - V. 401. - P. 431 - 440.
- 58. С.А. Кукушкин, В.В. Слезов. Дисперсные системы на поверхности твердых тел, Наука, С.-Петербург, 1996.
- 59. A.Yu. Kaminski, R.A. Suris. Smoothing of crystal surfaces during growth interruption. // Appl. Surf. Sci. 1996. V. 104. P. 312 316.
- M. Uwaha. Roughening and smoothing of steps with surface diffusion. // Surf.
 Sci. 1993. V. 283. P. 366 370.

- T. Irisawa, K. Matsumoto, Y. Arima, T. Kan. Two dimensional nucleation processes by Monte Carlo simulation. // Sci. Rep. RITU. 1997. V. A43. P. 9 12.
- 62. K. Sudoh, M. Okano, T. Irisawa, K. Matsumoto, M. Uwaha. Relaxation dynamics of labyrinthine submonolayer films. // Surf. Sci. 2013. V. 609. P. L1 L4.
- 63. M. Uwah. Surface Step Dynamics: Basic Concepts, Theory and Simulation // K. Sato, K. Nakajima, Y. Furukawa. Fundamentals and Applications of Crystal Growth Research and Technology. Elsevier, 2001, p. 78 – 99.
- 64. T. Irisawa, K. Matsumoto, K. Sudoh, H. Iwasaki, M. Uwaha. Smoothing of an atomically rough vicinal surface – STM observation and MC simulation. // Surf. Sci. – 2008. – V. 602. – P. 2880 – 2885.
- 65. V.P. Zhdanov. Diffusion of adsorbed particles with attractive lateral interactions at low temperature. // Surf. Sci. 2013. V. 617. P. 199 206.
- 66. J.H. Neave, P.J. Dobson, B.A. Joyce, J. Zhang. Reflection high energy electron diffraction oscillations from vicinal surfaces – a new approach to surface diffusion measurements. // App. Phys. Lett. – 1985. – V. 47. – P. 100 – 102.
- 67. Z.Sh. Yanovitskaya, I.G. Neizvestny, N.L. Shwartz, M.I. Katkov, I.P. Ryzhenkov. Desynchronization mode of 2D-island creation on the vicinal surface during MBE growth. // Appl. Surf. Sci. 1998. V. 123. P. 729 733.
- 68. J.M. Van Hove, P.I. Cohen. Reflection high energy electron diffraction measurement of surface diffusion during the growth of gallium arsenide by MBE. // J. Cryst. Growth. – 1987. – V. 81. – P. 13 – 18.
- K. Ohta, T. Kojima, T. Nakagawa. Anisotropic surface migration of Ga atoms on GaAs (001). // J. Cryst. Growth. – 1989. – V. 95. – P. 71 – 74.

- 70. M.A. Salmi, M. Alatalo, T. Ala-Nissila, R.M. Nieminen. Energetics and diffusion paths of gallium and arsenic adatoms on flat and stepped GaAs(001) surfaces. // Surf. Sci. – 1999. – V. 425. – P. 31 – 47.
- 71. A. Kley, P. Ruggerone, M. Scheffler. Novel Diffusion Mechanism on the GaAs(001) Surface: The Role of Adatom-Dimer Interaction. // Phys. Rev. Lett. 1997. V. 76. P. 5278 5281.
- J.M. Kosterlitz, D.J. Thouless. Ordering, metastability and phase transitions in two-dimensional systems. // J. Phys. – 1973. – V. 6. – P. 1181–1203.
- 73. M. den Nijs, E.K. Riedel, E.H. Conrad, T. Engel. Roughening of stepped metal surfaces. // Phys. Rev. Lett. – 1985. – V. 55. – P. 1689 – 1692.
- 74. M. Elbaum. Roughening transition observed on the prism facet of ice. // Rhys.
 Rev. Lett. 1991. V. 67. P. 2982 2985.
- 75. N.C. Bartelt, R.M. Tromp, E.D. Williams. Step capillary waves and equilibrium island shapes on Si(001). // Phys. Rev. Lett. – 1994. – V. 73. – P. 1656 – 1659.
- 76. Y. Fukaya, Y. Shigeta. New phase and surface melting of Si(111) at high temperature above the (7x7)-(1x1) phase transition. // Phys. Rev. Lett. 2000. V. 85. P. 5150 5153.
- 77. Д.В. Щеглов, С.С. Косолобов, А.В. Латышев, С.А. Загарских, В.В. Копытов, В.И. Евграфов, Г.В. Шувалов, В.Ф. Матвейчук, К.В. Тукмачев. Разработка и аттестация комплекта мер СТЕПП-ИФП-1 для обеспечения единства измерений в нанометровом диапазоне. // Датчики и системы. 2012. V. 6. Р. 21 23.
- 78. G.S. Bales, A. Zangwill. Morphological instability of a terrace edge during step-flow growth. // Phys. Rev. B. – 1990. – V. 41. – P. 5500 – 5508.
- W.W. Mullins, R.F. Sekerka. Stability of a planar interface during solidification of a dilute binary alloy. // J. Appl. Phys. 1964. V. 35. P. 444 451.

- V.L. Alperovich, O.E. Tereshchenko, N.S. Rudaya, D.V. Sheglov, A.V. Latyshev, A.S. Terekhov. Surface passivation and morphology of GaAs(100) treated in HCl-isopropyl alcohol solution. // Appl. Surf. Sci. 2004. V. 235. P. 249 259.
- D.V. Brunev, I.G. Neizvestny, N.L. Shwartz, Z.Sh. Yanovitskaya. Influence of Schwoebel barriers and surface diffusion anisotropy on surface relief evolution during epitaxial growth: simulation. // Phys. Low-Dim. Struct. – 2001. – V. 5 – 6. – P. 173 – 183.
- N. Metropolis, A.W. Rosenbluth, M.N. Rosenbluth, A.H. Teller, E. Teller. Statistic modeling. // J. Chem. Phys. – 1953. – V. 21. – P. 1087 – 1098.
- 83. G. Marsaglia. Xorshift RNGs. // J. Stat. Softw. 2003. V. 8. P. 14 19.
- 84. Л. Ченг, К. Плог. Молекулярно-лучевая эпитаксия и гетероструктуры.: Пер. с англ. – М.: Мир, 1989. – 584 с.
- 85. G.R. Bell, T.S. Jones, B.A. Joyce. Direct observation of anisotropic step activity on GaAs(001). // Surf. Sci. 1999. V. 429. P. L492 L496.