

УДК 538.911 : 51-73

МОДЕЛИРОВАНИЕ МЕТОДОМ МОНТЕ-КАРЛО ПРОЦЕССА ФОРМИРОВАНИЯ НАНОСТРУКТУР $A^{III}B^V$ С ПОМОЩЬЮ КАПЕЛЬНОЙ ЭПИТАКСИИ*

М. А. Василенко^{1,2}, А. Г. Настовьяк¹, И. Г. Неизвестный^{1,2},
Н. Л. Шварц^{1,2}

¹Институт физики полупроводников им. А. В. Ржанова СО РАН,
630090, г. Новосибирск, просп. Академика Лаврентьева, 13

²Новосибирский государственный технический университет,
630073, г. Новосибирск, просп. К. Маркса, 20

E-mail: alla@isp.nsc.ru

Предложена решётчатая модель Монте-Карло формирования полупроводниковых наноструктур по механизму роста пар — жидкость — кристалл. С её использованием промоделирован рост наноструктур GaAs методом капельной эпитаксии в диапазоне температур 500–600 К при потоках As_2 с интенсивностью 0,005–0,04 МС/с. Продемонстрирована зависимость морфологии формируемых структур от параметров роста. Проведены исследования травления подложки GaAs галлиевой каплей. Определены диапазоны температур и потоков мышьяка для формирования нанокольцев GaAs. Проанализированы условия образования одинарных и двойных концентрических колец.

Ключевые слова: капельная эпитаксия, нанокольца, GaAs, моделирование Монте-Карло.

DOI: 10.15372/AUT20160513

Введение. Повышенный интерес к наноструктурам на основе соединений $A^{III}B^V$ обусловлен перспективами их использования в опто- и наноэлектронике [1–5]. Методом капельной эпитаксии (КЭ) на основе соединений $A^{III}B^V$ формируются наноструктуры с разной морфологией: квантовые точки [6, 7], квантовые кольца [8–14] и нанотверстия [15, 16]. Одним из главных достоинств метода капельной эпитаксии является возможность создавать 3D-наноструктуры на основе материалов с рассогласованными [17, 18] и согласованными параметрами кристаллических решёток [6, 19]. Капельная эпитаксия используется для построения наноструктур со сложной морфологией [20, 21]. В последние годы появились работы, посвящённые локальному капельному травлению (ЛКТ) [22, 23], основанному на методе КЭ. В ряде случаев ЛКТ является альтернативой традиционной фотолитографии, особенно когда речь идёт о создании отверстий малых размеров. Травление подложки каплями галлия позволяет формировать шаблоны для гетеророста [15, 24]. В [25] анализировалась роль мышьяка при травлении GaAs(001) каплями галлия. Особый интерес вызывают квантовые кольца, так как на их основе можно изготовить солнечные элементы и фотодетекторы [2, 26]. Большое количество работ посвящено механизмам формирования таких колец методом КЭ [12, 27–32]. Экспериментально показано, что систему концентрических колец можно получить при многостадийном росте: при постоянном потоке

*Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты № 14-02-00776, № 16-31-00120) и Президиума РАН (программа № 0023).

мышьяка изменять температуру подложки [12]. Однако двойные кольца могут быть образованы в едином ростовом процессе при неизменной температуре и потоке мышьяка [8, 9, 14, 27]. В [30, 31] предложена аналитическая модель формирования концентрических колец, позволяющая оценивать температуру подложки и давление мышьяка, необходимые для образования двойных и одиночных колец. В этих работах отмечалось, что морфология конечной структуры определяется кинетическими факторами, в частности зависит от диффузионных характеристик атомов галлия и мышьяка.

Физические свойства квантовых низкоразмерных структур зависят от их размеров, состава и формы. Большую помощь в выборе условий роста наноструктур с заданными размерами и морфологией может оказать моделирование. Моделирование методом Монте-Карло (МК) даёт возможность выяснить кинетические особенности роста наноструктур и прогнозировать их морфологию. В [33] с помощью МК-моделирования анализировались начальные стадии заполнения массива отверстий на поверхности GaAs(001) арсенидом индия. Недавно появилась первая работа по МК-моделированию КЭ [34]. В ней использовалась решёточная МК-модель, в которой кристаллическая структура представляла собой (1 + 1)-мерный аналог цинковой обманки GaAs с чётким различием жидкой и твёрдой фаз. Такое упрощение кристаллической структуры не позволило анализировать эффекты, связанные с трёхмерностью объектов и ориентацией поверхности. Кроме того, в этой модели не были рассмотрены процессы диссоциации и образования молекул мышьяка, предполагалось, что мышьяк поступает на поверхность в атомарном виде.

В [35] нами предложена решёточная кинетическая МК-модель КЭ, в которой мышьяк поступает в виде молекул As₂ и учитывается трёхмерность кристаллической решётки GaAs типа цинковой обманки. Эта модель дала возможность проанализировать влияние температуры, интенсивности потока мышьяка и ориентации подложки на морфологию формируемых структур. Однако сравнение результатов моделирования и экспериментов показало, что в области высоких температур и низких потоков мышьяка, характерных для ЛКТ, в модельной системе капли жидкого галлия слишком интенсивно травили подложку.

В данной работе предлагается усовершенствованная МК-модель КЭ, с помощью которой точнее описываются процессы формирования наноструктур в высокотемпературной области при низких потоках мышьяка. Представлены результаты моделирования формирования наноконструкций и наноотверстий. Приведён детальный анализ процесса роста двойного кольца, позволивший описать механизм его образования.

Модель капельной эпитаксии. *Физическая модель.* Новая модель капельной эпитаксии является развитием предложенной ранее решёточной МК-модели КЭ на основе механизма пар — жидкость — кристалл [35]. При КЭ соединений A^{III}B^V элементы групп III и V поступают на подложку последовательно. Сначала на полупроводниковую подложку осаждают только атомы металла (элемент группы III). После собирания атомов в капли включают поток мышьяка, который кристаллизует их в виде структур различной морфологии.

Основные атомарные процессы, заложенные в МК-модель КЭ GaAs: адсорбция и десорбция Ga и As₂, диссоциация и образование As₂, поверхностная диффузия атомов мышьяка, галлия и молекул мышьяка, плавление галлия, растворение Ga и As в жидкой капле Ga, диффузия мышьяка внутри капли, кристаллизация Ga и As на границе раздела жидкость — кристалл. Предполагалось, что мышьяк испаряется только в виде молекул, а галлий — в виде атомов твёрдой и жидкой фаз. Испарением атомарного мышьяка можно пренебречь, так как его равновесное давление в широком диапазоне температур более чем на три порядка ниже молекулярного [36]. Атомы галлия и мышьяка могли растворяться в галлиевой капле на обеих границах раздела: жидкость — пар и жидкость — кристалл. Принималась во внимание слабая растворимость мышьяка в жидком галлии. В

соответствии с фазовой диаграммой $\text{Ga}_{1-x}\text{As}_x$ равновесная концентрация мышьяка для температур, типичных для КЭ (150–500 °С), составляет менее 1 % [37].

Формирование новой кристаллической фазы осуществлялось следующим образом. Сначала на подложку GaAs осаждался только галлий, при этом атомы галлия за счёт диффузионных перемещений собирались в капли. Затем на поверхность осаждались молекулы мышьяка As_2 . На поверхности часть молекул распадалась на атомарный мышьяк, оставшийся молекулярный мышьяк диффундировал по поверхности и мог испариться. Атомарный мышьяк, попадая на жидкую каплю, мог раствориться в ней. За счёт градиента концентрации в капле атомы As диффундировали к границе раздела капля — кристалл, где происходила кристаллизация. Если концентрация растворённого мышьяка у поверхности подложки под каплей оказывалась больше его концентрации у границы раздела пар — жидкость, то наблюдался выход мышьяка из капли. В этом случае происходило травление подложки галлиевой каплей. Кристаллизация жидкого галлия и формирование твёрдой фазы могли наблюдаться не только на границе раздела капля — подложка, но и на поверхности подложки. Когда атомы Ga из капли за счёт диффузии попадали на поверхность GaAs и взаимодействовали с атомами As, образовывалась твёрдая фаза GaAs. Для описания этих процессов в [35] рассмотрена 5-компонентная система: $\text{As}(s)$, $\text{Ga}(s)$, $\text{As}(l)$, $\text{Ga}(l)$, As_2 — мышьяк и галлий в твёрдой и жидкой фазах соответственно и молекулярный мышьяк. В новом варианте из модели исключена жидкая фаза мышьяка, что позволяет уменьшить количество энергетических параметров модели, но требует иного подхода к имитации атомарных процессов в жидкой капле, определяемых присутствием в ней мышьяка.

Модель вычислений. Вычисления проводились на базе программного комплекса SilSim3D [38] с использованием решёточной МК-модели [39]. Для реализации модифицированного варианта модели КЭ требуется 4-компонентная система: As, As_2 , $\text{Ga}(s)$, $\text{Ga}(l)$ — мышьяк в атомарной и молекулярной форме и галлий в твёрдой и жидкой фазах. Жидкая фаза в решёточной модели роста GaAs наноструктур имитировалась, как в работе [35]. Основные атомарные процессы, рассматриваемые в модели, изображены на рис. 1, а.

Процессы распада и образования As_2 в модели описываются химическими реакциями вида $\text{As}_2 \rightarrow \text{As} + \text{As}$ (диссоциация молекулы мышьяка) и $\text{As} + \text{As} \rightarrow \text{As}_2$ (образование молекулы мышьяка). Эти процессы не являются определяющими при низкой концентрации мышьяка на поверхности, в частности при моделировании ЛКТ, но они оказываются суще-

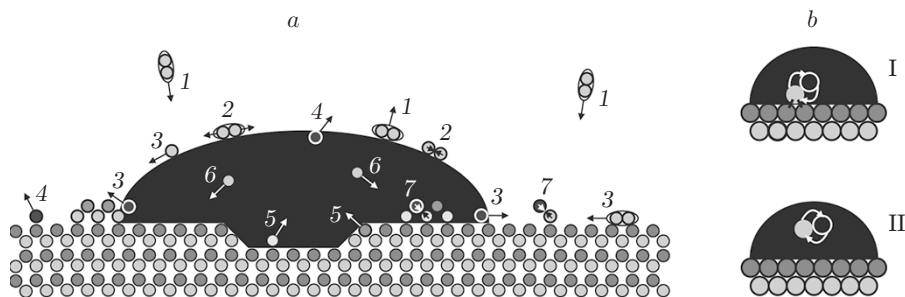


Рис. 1. Схема модельной системы: а — основные атомарные процессы, рассматриваемые в модели (1 — адсорбция и десорбция As_2 , 2 — диссоциация и образование As_2 , 3 — диффузия адатомов и молекул по поверхности, 4 — десорбция $\text{Ga}(l)$, 5 — растворение $\text{Ga}(s)$ и As в капле жидкого галлия, б — диффузия растворённого As в жидком галлии, 7 — кристаллизация $\text{Ga}(l)$); б — влияние окружения реагентов на реакцию обменной диффузии ($\text{Ga}(l)$ обозначен чёрным, $\text{Ga}(s)$ — серым, As — светло-серым цветом, такие же обозначения справедливы для остальных рисунков)

ственными при понижении температуры и повышении давления мышьяка, влияя на форму образующихся наноструктур. Фазовые переходы имитируются следующими реакциями: $\text{Ga}(l) + \text{Ga}(s) \rightarrow \text{Ga}(l) + \text{Ga}(l)$ — растворение галлия в капле или плавление галлия (E_{r_dis}), $\text{Ga}(l) + \text{As} \rightarrow \text{Ga}(s) + \text{As}$ — кристаллизация жидкого галлия в присутствии мышьяка (E_{r_cr}). Растворение мышьяка в капле металла и диффузия в капле имитируются в новой модели единой обменной реакцией $\text{As} + \text{Ga}(l) \rightarrow \text{Ga}(l) + \text{As}$. Различие между растворением и транспортом мышьяка определяется окружением реагентов этой реакции. Для получения резкой межфазной границы скорость растворения мышьяка на границе раздела жидкость — кристалл должна быть ниже скорости диффузии мышьяка внутри капли, что обеспечивается более высоким барьером на обменную реакцию на границе раздела фаз. На рис. 1, *b* конфигурация I соответствует растворению мышьяка, конфигурация II — диффузии. На границе раздела атомы мышьяка окружены атомами $\text{Ga}(s)$, что тормозит процесс растворения. Энергетический барьер для конфигурации I больше, чем для конфигурации II: $E_{rI} > E_{rII}$. После модификации модели потребовалась переоценка её энергетических параметров, ответственных за фазовые превращения.

Энергии активации для процессов растворения Ga в жидкой капле и энергии кристаллизации на границе раздела подбирались на основании согласования экспериментальных и модельных данных по температурной зависимости растворимости мышьяка в жидком галлии [37]. Результаты такого согласования представлены в [40]. Равновесная концентрация мышьяка определяется скоростями растворения и кристаллизации галлия на границе жидкость — кристалл и скоростью обменной диффузии. Так как каждая реакция определяется двумя параметрами: энергией активации и предэкспоненциальным множителем, то задача по расчёту температурной зависимости равновесной концентрации мышьяка является многопараметрической, а зависимость скорости реакции от окружения реагентов делает её нелинейной. Энергия активации диффузии мышьяка в жидком галлии взята равной 0,7 эВ на основании эксперимента [41]. Представление экспериментальных температурных зависимостей концентрации мышьяка [37] в аррениусовских координатах показало отклонение её от линейной при высоких температурах, что связано с зависимостью скорости растворения GaAs в жидком металле от концентрации мышьяка в нём. Была предложена методика оценки энергий активации растворения и кристаллизации галлия и предэкспоненциальных констант скоростей этих процессов. Такая методика позволила согласовать модельные и экспериментальные данные в широком диапазоне температур, включая область неаррениусовской зависимости. Получены следующие значения энергий активации и предэкспоненциальных множителей: $E_{r_dis} = 1,6$ эВ, $K_r = 10^{15} \text{ c}^{-1}$ — растворение $\text{Ga}(s)$ в жидком галлии; $E_{r_cr} = 0,9$ эВ, $K_r = 9 \cdot 10^{10} \text{ c}^{-1}$ — кристаллизация галлия. Энергия активации процесса растворения увеличивается, когда реагент $\text{Ga}(s)$ окружён мышьяком. Барьер на реакцию кристаллизации уменьшается, когда в окружении $\text{Ga}(l)$ находится мышьяк, а в окружении As — галлий в твёрдой фазе. При описании растворения мышьяка с помощью обменной реакции $\text{As} + \text{Ga}(l) \rightarrow \text{Ga}(l) + \text{As}$ ($E_{r_ex} = 0,7$ эВ, $K_r = 10^{13} \text{ c}^{-1}$) энергетический барьер на реакцию повышается в сравнении с обменной диффузией на 0,3 эВ/атом в окружении атомами $\text{Ga}(s)$. Уточнение энергетических параметров модели позволило приблизить результаты моделирования ЛКТ к эксперименту.

Результаты моделирования. В работе [35] с помощью МК-моделирования нами изучалась зависимость морфологии наноструктур GaAs, формируемых методом капельной эпитаксии, от параметров роста и ориентации подложки. При изменении температуры и потока As_2 в диапазонах 420–900 К и 0,01–1 МС/с соответственно был получен ряд структур: компактные трёхмерные кристаллы, нанокластеры с жидким ядром галлия внутри, нанокольца и наноотверстия. Форма наноструктур зависела не только от ростовых условий, но и от ориентации поверхности. Анализ результатов моделирования показал, что скорость травления подложки жидким галлием критически зависит от ориентации поверх-

ности подложки и максимальна для ориентации (001). Была продемонстрирована возможность образования нанотверстий и наноклец в модельной системе только на подложках с ориентацией поверхности (001). На поверхностях GaAs(111)А и GaAs(111)В формировались только компактные кристаллические кластеры или плёнки, а травления подложек с такой ориентацией поверхности практически не наблюдалось. Рассмотрим результаты локального капельного травления подложек GaAs(001) жидким галлием и формирования наноклец на поверхностях с ориентацией (001).

Локальное капельное травление является частным случаем капельной эпитаксии, когда отжиг капель производится при повышенных температурах в очень слабых потоках мышьяка. В результате на поверхности формируются отверстия. Моделирование проводилось для температур и потоков мышьяка, соответствующих экспериментальным условиям ЛКТ подложки GaAs(001) [15, 22, 24, 42]: $T = 700\text{--}900\text{ K}$, интенсивность потока As_2 составляла $0,01\text{ MC/c}$. Диаметр исходной капли варьировался в пределах $d_0 = 10\text{--}30\text{ нм}$. После отжига галлиевых капель формировались нанотверстия, глубина которых зависела от температуры, исходного диаметра капли и потока мышьяка. Получены зависимости глубины нанотверстий от температуры и начального диаметра капли галлия (рис. 2). Глубина отверстия повышается с температурой. Такая зависимость ожидаема, поскольку скорость растворения GaAs в жидком галлии увеличивается с температурой. Анализ зави-

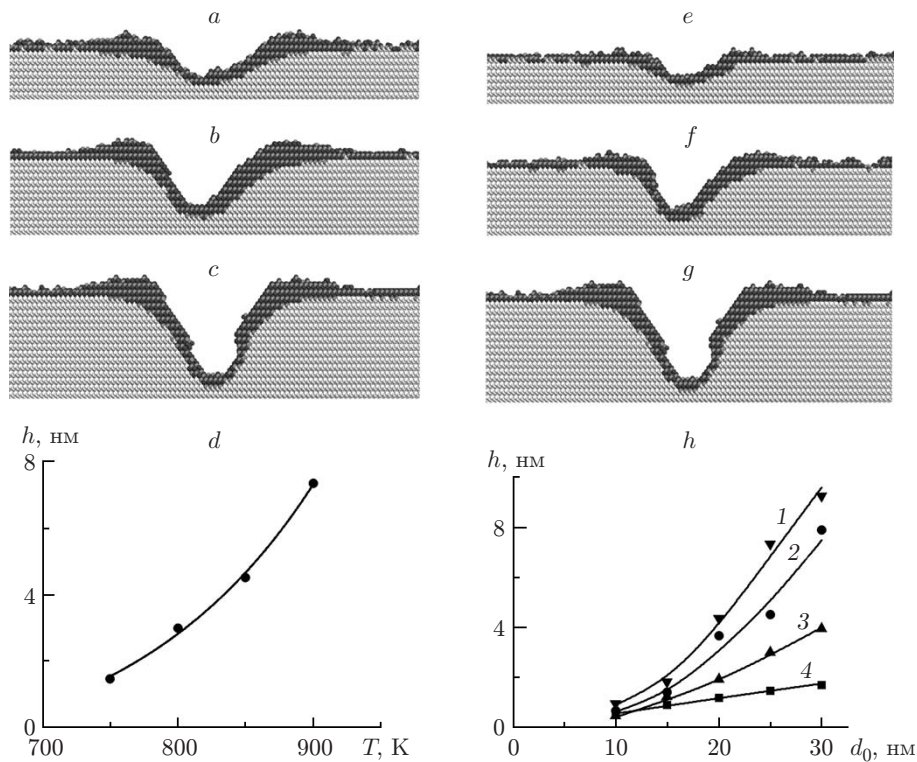


Рис. 2. Локальное капельное травление подложки жидкой каплей Ga: *a—c* — сечения подложки GaAs(001) при $T = 800, 850, 900\text{ K}$ соответственно; *d* — зависимость глубины нанотверстия h от температуры при $F_{\text{As}_2} = 0,01\text{ MC/c}$, $d_0 = 25\text{ нм}$; *e—g* — сечения подложки GaAs(001) после отжига при $T = 900\text{ K}$, $F_{\text{As}_2} = 0,01\text{ MC/c}$ для начальных диаметров капли 15, 20, 25 нм соответственно; *h* — зависимость глубины нанотверстия от начального диаметра капли d_0 для различных температур (кривая 1 — 900, 2 — 850, 3 — 800, 4 — 750 K). Атомы Ga и As исходной подложки отмечены более светлым цветом, чем атомы, образовавшиеся после кристаллизации

симости глубины наноотверстия от начального диаметра капли показал, что существует минимальный диаметр капли, ниже которого подложка почти не травится. Имеется два конкурирующих процесса, ответственных за формирование отверстий: растворение — кристаллизация GaAs на границе раздела жидкость — кристалл и испарение галлия. Скорость испарения Ga для рассматриваемых температур достаточно высока, поэтому маленькие капли не успевают вытравить отверстие до своего испарения. Стоит отметить, что диаметр модельных капель меньше экспериментальных. В эксперименте отношение диаметра отверстия к глубине варьировалось от 7 до 15 в зависимости от температуры, а при моделировании — от 1 до 10. В некотором диапазоне диаметров капель глубина наноотверстия практически линейно зависит от d_0 . Для малых диаметров при высокой температуре наблюдается отклонение от линейной зависимости. Температура влияет на форму наноотверстий. При высоких температурах стенки отверстия ограничены поверхностями (111)A и (111)B и наблюдается асимметрия формы наноотверстия в направлениях $\langle 110 \rangle$.

Концентрические кольца. Моделирование роста колец осуществлялось на подложках GaAs(100) в диапазоне температур 500–600 К из капель галлия диаметром 30 нм. Поток мышьяка изменялся в диапазоне $5 \cdot 10^{-3}$ –0,04 МС/с. Формирование кольцевой структуры определяли кристаллизация вдоль тройной линии и кристаллизация на подложке. Травление подложки каплями жидкого галлия и кристаллизация под каплями в этом диапазоне ростовых условий практически скомпенсированы.

В работе [31] показано, что для образования двойного кольца необходимо, чтобы расстояние между каплями было много больше длины диффузии галлия по поверхности. Циклические граничные условия в латеральных направлениях при малых размерах модельной поверхности соответствуют плотному массиву капель галлия, для которых требуемое условие не выполняется. При больших расстояниях между каплями всю поверхность можно условно разделить на три области: область капли, область диффузии галлия из капли, область диффузионного сбора мышьяка. Так как в условиях избытка галлия скорость кристаллизации задаётся скоростью поступления мышьяка, то образование колец должно происходить на границах между областями по причине дополнительного сбора мышьяка в эти области. Внутреннее кольцо формируется по периметру капли за счёт диффузионного сбора мышьяка с её поверхности. Внешнее кольцо может возникать за счёт дополнительного диффузионного сбора мышьяка из As-стабилизированных областей. Между кольцами слой GaAs растёт с меньшей скоростью, поскольку определяется только внешним потоком мышьяка. В условиях, когда расстояние между каплями меньше длины диффузии галлия по поверхности, вся поверхность оказывается Ga-стабилизированной и второе кольцо не образуется. Чтобы обеспечить условия для формирования двойного кольца, размеры модельной поверхности выбирались достаточно большими. Так как время вычислений определяется общим количеством атомов модельной системы, то для анализа роста двойных колец была выбрана поверхность размером $m \times n$ с $m \gg n$ и $m > \lambda_{\text{difGa}}$, т. е. задача из трёхмерной становилась почти двумерной. Этот приём позволил увеличить расстояние между центрами жидких «капель» и пронаблюдать образование двойных колец.

Рис. 3 демонстрирует влияние расстояния между каплями галлия L на морфологию кольца. При $L = 100$ нм формируется одиночное кольцо (рис. 3, а). Диаметр кольца практически совпадает с размером исходной капли галлия. При заданных температуре ($T = 550$ К) и потоке мышьяка ($F_{\text{As}_2} = 0,005$ МС/с) длина диффузии галлия λ_{difGa} оказывается больше $L/2$ и между каплями образуется однородный по толщине слой GaAs. При увеличении расстояния между каплями до 140 нм формируется двойное кольцо (рис. 3, б). В данном случае $L > 2\lambda_{\text{difGa}}$ и на границу Ga- и As-стабилизированных поверхностей начинает поступать дополнительный мышьяк за счёт диффузионного сбора с подложки. При таких низких температурах испарение галлия не происходит, поэтому общий объём

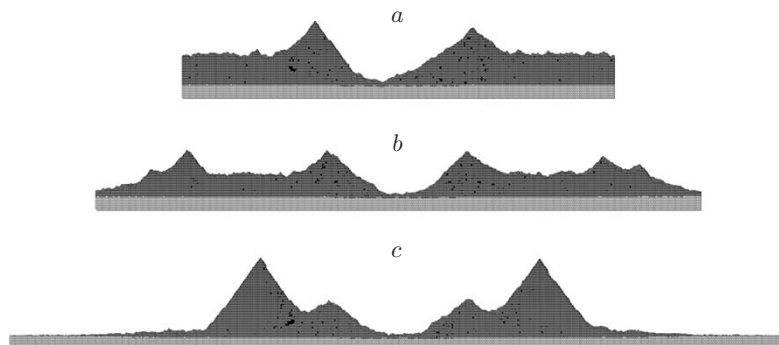


Рис. 3. Влияние расстояния между каплями L на морфологию кольца: a — $L = 100$ нм, b — $L = 140$ нм, c — $L = 180$ нм при $T = 550$ К, $F_{\text{As}_2} = 0,005$ МС/с. Сечения модельных структур; диаметр исходной капли галлия 30 нм

выросшего арсенида галлия определяется объёмом исходной капли галлия, и толщина слоя GaAs между внутренним и внешним кольцами на рис. 3, b оказывается меньше толщины слоя GaAs на рис. 3, a . Дальнейшее увеличение размера подложки приводит к большему диффузионному сбору мышьяка с поверхности между каплями и соответственно к более интенсивному росту внешнего кольца. При $L = 2(\lambda_{\text{difGa}} + \lambda_{\text{As}_2})$, где λ_{As_2} — длина диффузии мышьяка до испарения, диффузионный сбор мышьяка с As-стабилизированной поверхности достигает своего максимального значения и продолжающийся рост L почти не меняет морфологию кольца. Следует отметить, что в эксперименте внешнее кольцо всегда ниже внутреннего. Завышенное значение высоты внешнего кольца в модельной системе можно объяснить двумя причинами: малым значением λ_{difGa} и рассмотрением квазиодномерной задачи диффузии вместо двумерной.

На рис. 4 показано влияние интенсивности потока мышьяка на форму кольца. При $F_{\text{As}_2} = 0,01$ МС/с и $T = 600$ К расстояние между каплями $L = 180$ нм оказывается меньше $2\lambda_{\text{difGa}}$, поэтому на поверхности наблюдается формирование одиночного кольца (рис. 4, a). Увеличение потока мышьяка в 2 раза уменьшает длину диффузии галлия по поверхности, при этом формируется двойное кольцо (рис. 4, b). При дальнейшем увеличении потока мышьяка снова появляется одиночное кольцо (рис. 4, c). Однако в данном случае одиночное кольцо есть результат слияния внутреннего и внешнего колец.

Переход от одиночного кольца к двойному можно осуществить, изменяя не поток мышьяка, а температуру. Повышение температуры приводит к увеличению длины диффузии

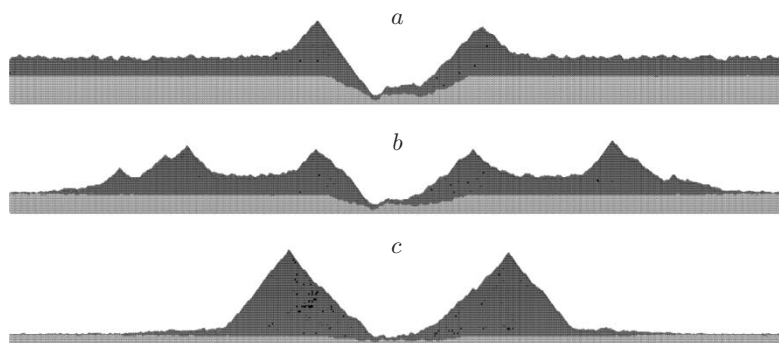


Рис. 4. Влияние интенсивности потока мышьяка на морфологию кольца: a — $F_{\text{As}_2} = 0,01$ МС/с, b — $F_{\text{As}_2} = 0,02$ МС/с, c — $F_{\text{As}_2} = 0,04$ МС/с при $L = 180$ нм, $T = 600$ К, $d_0 = 30$ нм

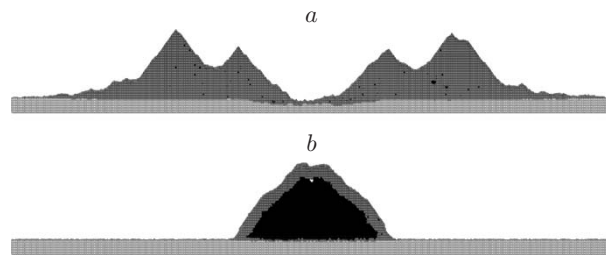


Рис. 5. Сечения модельных структур после кристаллизации капли галлия при разных температурах: a — $T = 600$ К, b — $T = 500$ К при $F_{\text{As}_2} = 0,04$ МС/с, $L = 140$ нм, $d_0 = 30$ нм

галлия, т. е. варьируя температуру, можно изменять соотношение между L и λ_{difGa} . Так как диффузионные характеристики галлия экспоненциально зависят от температуры, то даже небольшое её изменение заметно меняет морфологию. Рис. 5 иллюстрирует влияние температуры на морфологию наноструктур. При понижении температуры с 600 до 500 К вместо двойного кольца образуется компактный трёхмерный кластер, представляющий собой наноструктуру жидкое ядро—кристаллическая оболочка. Формирование подобных структур было обнаружено экспериментально [34, 43]. Отметим, что температурный диапазон формирования модельных кольцевых структур в данной работе согласуется с экспериментальными результатами [9, 13, 14, 27], но противоречит работе [8], в которой кольцевые структуры получались при $T = 473$ К (200 °С). В модельной системе при таких низких температурах образуются компактные кластеры со структурой жидкое ядро—кристаллическая оболочка. Аналогичный результат был получен и в [34].

На рис. 6 показаны фрагменты сечений и вида сверху модельной поверхности размером 140×4 нм, демонстрирующие кинетику формирования кольца. При выбранных температуре и потоке размер поверхности удовлетворяет условию $L > 2\lambda_{\text{difGa}}$, необходимому для образования двойного кольца. Сразу после осаждения галлия вся поверхность оказывается Ga-стабилизированной. После включения потока мышьяка зарождается внутреннее кольцо вдоль тройной линии и происходит рост плёнки GaAs на расстоянии, равном длине диффузии галлия, определяемой внешним потоком мышьяка. Остальная часть поверхности становится As-стабилизированной. На рис. 6, a хорошо видны её области. После этого начинается формирование внешнего кольца на границе As- и Ga-стабилизированных областей (рис. 6, b). Соотношение между скоростями роста внутреннего и внешнего колец изменяется в процессе роста. Со временем уменьшается размер галлиевой капли, что приводит к снижению количества избыточного мышьяка, поступающего на границу раздела с поверхности капли, а это, в свою очередь, понижает скорость роста внутреннего кольца. Кроме того, уменьшение размера капли обуславливает увеличение площади As-стабилизированной поверхности, которая обеспечивает дополнительный диффузионный сбор мышьяка для роста внешнего кольца. Повышение диффузионного сбора мышьяка с подложки влечёт за собой уменьшение λ_{difGa} , т. е. длина диффузии галлия постепенно сокращается со временем. В нашей модельной системе с одномерной диффузией высота внешнего кольца в некоторый момент времени становится больше внутреннего (рис. 6, c). Позже оба кольца сливаются (рис. 6, d), и по окончании кристаллизации Ga формируется одиночное кольцо (рис. 6, e). Следует отметить, что форма модельной капли галлия больших размеров не согласуется с формой экспериментальной капли. Это связано с ограничениями решёточной модели. Но для рассматриваемой задачи, в которой процессы диффузии являются основными, такое ограничение оказывается не принципиальным.

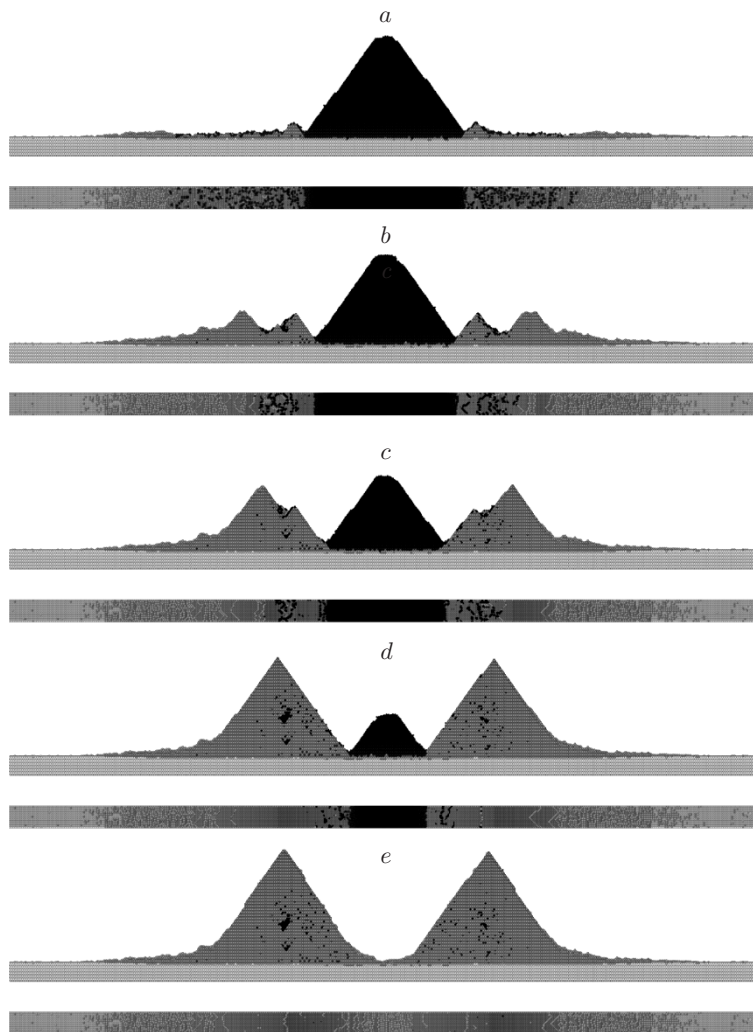


Рис. 6. Сечения и вид сверху модельной поверхности размером 140×4 нм в разные моменты времени: *a* — $t = 85$ с, *b* — $t = 252$ с, *c* — $t = 423$ с, *d* — $t = 677$ с, *e* — $t = 844$ с при $T = 550$ К, $F_{\text{As}_2} = 0,01$ МС/с, $d_0 = 30$ нм

Заключение. В данной работе реализована решёточная модель Монте-Карло капельной эпитаксии. Продемонстрирована зависимость морфологии наноструктур GaAs от параметров роста. Получены зависимости глубины nanoотверстий на поверхности GaAs(001) от температуры и начального диаметра капли галлия. Анализ зависимости глубины nanoотверстия от начального диаметра капли показал, что существует минимальный диаметр, ниже которого подложка почти не травится. Рассмотрены условия формирования одиночных и двойных колец. Показано, что наблюдение двойного кольца возможно в определённом диапазоне температур и потоков мышьяка на подложках, размеры которых превышают удвоенную длину диффузии галлия по поверхности.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Wu J., Wang Zh. M. Droplet epitaxy for advanced optoelectronic materials and devices // Journ. Phys. D: Appl. Phys. 2014. **47**, N 17. 173001.
2. Wu J., Wang Zh. M., Dorogan V. G. et al. Strain-free ring-shaped nanostructures by droplet epitaxy for photovoltaic application // Appl. Phys. Lett. 2012. **101**. 043904.

3. **Wu J., Li Zh., Shao D. et al.** Multicolor photodetector based on GaAs quantum rings grown by droplet epitaxy // *Appl. Phys. Lett.* 2009. **94**. 171102.
4. **Scaccabarozzi A., Adorno S., Bietti S. et al.** Evidence of two-photon absorption in strain-free quantum dot GaAs/AlGaAs solar cells // *Phys. Status Solidi. RRL.* 2013. **7**, Is. 3. P. 173–176.
5. **Mano T., Kuroda T., Mitsuishi K. et al.** GaAs/AlGaAs quantum dot laser fabricated on GaAs (311)A substrate by droplet epitaxy // *Appl. Phys. Lett.* 2008. **93**. 203110.
6. **Koguchi N., Ishige K.** Growth of GaAs epitaxial microcrystals on an S-terminated GaAs substrate by successive irradiation of Ga and As molecular beams // *Jap. Journ. Appl. Phys.* 1993. **32**, Pt. 1. N 5A. P. 2052–2058.
7. **Nemcsics Á., Heyn Ch., Tóth L. et al.** Cross-sectional transmission electron microscopy of GaAs quantum dots fabricated by filling of droplet-etched nanoholes // *Journ. Cryst. Growth.* 2011. **335**, Is. 1. P. 58–61.
8. **Mano T., Kuroda T., Sanguinetti S. et al.** Self-assembly of concentric quantum double rings // *Nano Lett.* 2005. **5**, Is. 3. P. 425–428.
9. **Somaschini C., Bietti S., Sanguinetti S. et al.** Self-assembled GaAs/AlGaAs coupled quantum ring-disk structures by droplet epitaxy // *Nanotechnology.* 2010. **21**, N 12. 125601.
10. **Gong Z., Niu Z. C., Huang S. S. et al.** Formation of GaAs/AlGaAs and InGaAs/GaAs nanorings by droplet molecular-beam epitaxy // *Appl. Phys. Lett.* 2005. **87**. 093116.
11. **Tung K. H. P., Gao H. W., Xiang N.** Time evolution of self-assembled GaAs quantum rings grown by droplet epitaxy // *Journ. Cryst. Growth.* 2013. **371**. P. 117–121.
12. **Somaschini C., Bietti S., Koguchi N., Sanguinetti S.** Fabrication of multiple concentric nanoring structures // *Nano Lett.* 2009. **9**, Is. 10. P. 3419–3424.
13. **Somaschini C., Bietti S., Fedorov A. et al.** Outer zone morphology in GaAs ring/disk nanostructures by droplet epitaxy // *Journ. Cryst. Growth.* 2011. **323**, Is. 1. P. 279–281.
14. **Lee J. H., Wang Zh. M., Abuwaar Z. Y. et al.** Evolution between self-assembled single and double ring-like nanostructures // *Nanotechnology.* 2006. **17**, N 15. P. 3973–3976.
15. **Heyn Ch., Stemmann A., Klingbeil M. et al.** Mechanism and applications of local droplet etching // *Journ. Cryst. Growth.* 2011. **323**, Is. 1. P. 263–266.
16. **Heyn Ch.** Kinetic model of local droplet etching // *Phys. Rev. B.* 2011. **83**. 165302.
17. **Mano T., Watanabe K., Tsukamoto S. et al.** Fabrication of InGaAs quantum dots on GaAs(001) by droplet epitaxy // *Journ. Cryst. Growth.* 2000. **209**, Is. 2–3. P. 504–508.
18. **Lee J. H., Wang Zh. M., Salamo G. J.** The control on size and density of InAs QDs by droplet epitaxy // *IEEE Trans. Nanotechnology.* 2009. **8**, N 4. P. 431–436.
19. **Heyn Ch., Stemmann A., Schramm A., Hansen W.** Droplet epitaxy of GaAs quantum dots on (001), vicinal (001), (110), and (311)A GaAs // *Journ. Cryst. Growth.* 2009. **311**, Is. 7. P. 1825–1827.
20. **Zha G.-W., Zhang L.-C., Yu Y. et al.** Morphological engineering of self-assembled nanostructures at nanoscale on faceted GaAs nanowires by droplet epitaxy // *Nanoscale Res. Lett.* 2015. **10**. P. 11.
21. **Lee J. H., Wang Zh. M., Abuwaar Z. Y., Salamo G. J.** Design of nanostructure complexes by droplet epitaxy // *Cryst. Growth & Design.* 2009. **9**, N 2. P. 715–721.
22. **Heyn Ch., Stemmann A., Eiselt R., Hansen W.** Influence of Ga coverage and As pressure on local droplet etching of nanoholes and quantum rings // *Journ. Appl. Phys.* 2009. **105**. 054316.
23. **Heyn Ch., Stemmann A., Hansen W.** Nanohole formation on AlGaAs surfaces by local droplet etching with gallium // *Journ. Cryst. Growth.* 2009. **311**, Is. 7. P. 1839–1842.
24. **Wang Zh. M., Liang B. L., Sablon K. A., Salamo G. J.** Nanoholes fabricated by self-assembled gallium nanodrill on GaAs(100) // *Appl. Phys. Lett.* 2007. **90**. 113120.

25. **Fuster D., González Y., González L.** Fundamental role of arsenic flux in nanohole formation by Ga droplet etching on GaAs(001) // *Nanoscale Res. Lett.* 2014. **9**, Is. 1. P. 309.
26. **Wu J., Shao D., Li Zh. et al.** Intermediate-band material based on GaAs quantum rings for solar cells // *Appl. Phys. Lett.* 2009. **95**. 071908.
27. **Somaschini C., Bietti S., Koguchi N., Sanguinetti S.** Shape control via surface reconstruction kinetics of droplet epitaxy nanostructures // *Appl. Phys. Lett.* 2010. **97**. 203109.
28. **Tong C. Z., Yoon S. F.** Investigation of the fabrication mechanism of self-assembled GaAs quantum rings grown by droplet epitaxy // *Nanotechnology*. 2008. **19**, N 36. 365604.
29. **Physics of Quantum Rings** /Ed. V. M. Fomin. Berlin — Heidelberg: Springer-Verlag, 2014. 487 p. Ch. 8: Self-assembled semiconductor quantum ring complexes by droplet epitaxy: Growth and physical properties /S. Sanguinetti, T. Mano, T. Kuroda. P. 161–196.
30. **Li X. L., Yang G. W.** Growth mechanisms of quantum ring self-assembly upon droplet epitaxy // *Journ. Phys. Chem. C*. 2008. **112**, N 20. P. 7693–7697.
31. **Li X. L., Yang G. W.** On the physical understanding of quantum rings self-assembly upon droplet epitaxy // *Journ. Appl. Phys.* 2009. **105**, N 10. 103507.
32. **Li X. L.** Formation mechanisms of multiple concentric nanoring structures upon droplet epitaxy // *Journ. Phys. Chem. C*. 2010. **114**, N 36. P. 15343–15346.
33. **Lee J. Y., Noordhoek M. J., Smereka P. et al.** Filling of hole arrays with InAs quantum dots // *Nanotechnology*. 2009. **20**, N 28. 285305.
34. **Reyes K., Smereka P., Nothorn D. et al.** A unified model of droplet epitaxy for compound semiconductor nanostructures: Experiments and theory // *Phys. Rev. B*. 2013. **87**. 165406.
35. **Vasilenko M. A., Neizvestny I. G., Shwartz N. L.** Formation of GaAs nanostructures by droplet epitaxy — Monte Carlo simulation // *Comput. Mater. Sci.* 2015. **102**. P. 286–292.
36. **Arthur J. R.** Vapor pressures and phase equilibria in the Ga-As system // *Journ. Phys. and Chem. Solids*. 1967. **28**. P. 2257–2267.
37. **Hall R. N.** Solubility of III–V compound semiconductors in column III liquids // *Journ. Electrochem. Soc.* 1963. **110**, Is. 5. P. 385–388.
38. **Zverev A. V., Zinchenko K. Yu., Shwartz N. L., Yanovitskaja Z. Sh.** A Monte Carlo simulation of the processes of nanostructures growth: The time-scale event-scheduling algorithm // *Nanotechnologies in Russia*. 2009. **4**, Is. 3. P. 215–224.
39. **Карпов А. Н., Зверев А. В., Настовьяк А. Г. и др.** Решёточная модель Монте-Карло для изучения процессов формирования наноструктур // *Вычисл. методы и программир.* 2014. **15**, вып. 3. С. 388–399.
40. **Suprunets A. G., Vasilenko M. A., Shwartz N. L.** Self-catalyzed GaAs and InAs nanowire growth (Monte Carlo simulation) // *Journ. Phys.: Conf. Ser.* 2016. **690**. 012011.
41. **Gorokhov V. A., Dedegkaev T. T., Ilyin Yu. L. et al.** The investigation of P- and As diffusion in liquid Gallium // *Crystal Res. & Technol.* 1984. **19**, Is. 11. P. 1465–1468.
42. **Li S., Wu J., Wang Zh. M. et al.** Thermal etching process of microscale pits on the GaAs(001) surface // *Phys. Status Solidi. RRL*. 2012. **6**, Is. 1. P. 25–27.
43. **Mano T., Mitsuishi K., Nakayama Y. et al.** Structural properties of GaAs nanostructures formed by a supply of intense As₄ flux in droplet epitaxy // *Appl. Surf. Sci.* 2008. **254**, Is. 23. P. 7770–7773.