

FÁBIO SANTOS NASCIMENTO

CARACTERIZAÇÃO DE FILMES FINOS DE CDTE POR MEIO DE
TEORIA DE ESCALA ANÔMALA

Dissertação apresentada à Universidade Federal de Viçosa, como parte das exigências do Programa de Pós-Graduação em Física Aplicada, para obtenção do título de *Magister Scientiae*.

VIÇOSA
MINAS GERAIS - BRASIL
2010

FÁBIO SANTOS NASCIMENTO

CARACTERIZAÇÃO DE FILMES FINOS DE CDTE POR MEIO DE TEORIA DE ESCALA ANÔMALA

Dissertação apresentada à Universidade Federal de Viçosa, como parte das exigências do Programa de Pós-Graduação em Física Aplicada, para obtenção do título de *Magister Scientiae*.

APROVADA: 25 de fevereiro de 2010.

Prof. Sérgio Galvão Coutinho

Prof. Sukano Olavo Ferreira

Prof. José Arnaldo Redinz

Prof. Marcos da Silva Couto

Prof. Silvio da Costa Ferreira Júnior
(Orientador)

Aos meus pais e amigos.

Agradecimentos

Expresso aqui meus sinceros agradecimentos a todas as pessoas que de alguma forma me ajudaram a conquistar mais esta etapa da vida. Aos professores do DPF/UFV pela minha formação acadêmica. Especialmente, aos professores Silvio da Costa Ferreira Junior (orientador) e Sukarno Olavo Ferreira (co-orientador) pela orientação, bons conselhos, esclarecimentos oferecidos e amizade. A todos os estudantes da pós-graduação. Aos amigos distantes (Junior, Willian) e aos próximos (Herman, Saulo, Leo, Augusto, Renata, Davidson, Thiago, Renan) que acompanharam essa trajetória da minha vida. Especialmente, Herman e Saulo pela amizade que perdura desde o início da graduação. À Leonora Polanco pelo amor, carinho, paciência e atenção dedicados. Aos meus pais (João e Magnólia) e irmão (Thiago) por tudo. Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq), à Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de Minas Gerais (FAPEMIG) e à Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES), pelo o auxílio financeiro.

Sumário

RESUMO	vi
ABSTRACT	vii
1 Introdução	1
2 Crescimento de Cristais	4
2.1 Epitaxia	4
2.1.1 Epitaxia por Feixe Molecular	7
2.1.2 Epitaxia por paredes quentes	10
2.2 Processos atômicos em MBE	11
2.2.1 Deposição	12
2.2.2 Dessorção	12
2.2.3 Difusão	13
2.3 Modos de crescimento	13
3 Caracterização de Interface	16
3.1 Fractais	16
3.2 Invariância de escala	19
3.3 Lei de escala de Family-Vicsek	20
3.4 Universalidade	22
3.4.1 Argumentos de escala em equações estocásticas	23
3.5 Rugosidade Anômala	25
3.6 Espectro de Potência de Interfaces Rugosas	27

3.7	AFM e Perfilômetria	29
4	Modelos de Crescimento	32
4.1	Deposição Aleatória	32
4.2	Modelo de Family	34
4.3	Modelo de Kim-Kosterlitz ou deposição aleatória com recusa	36
4.4	Equação de Mullins	38
4.5	Modelo de Sneppen	40
5	Resultados	44
5.1	Perfil das amostras	44
5.2	Expoentes de escala	46
6	Conclusão	57
	Referências bibliográficas	59

Resumo

NASCIMENTO, Fábio Santos. M. Sc., Universidade Federal de Viçosa, fevereiro, 2010. **Caracterização de filmes finos de CdTe por meio de teoria de escala anômala.** Orientador: Silvio Costa Ferreira Junior. Coorientadores: Sukarno Olavo Ferreira e Maximiliano Luis Munford

Filmes de telureto de cádmio crescidos sobre substratos de vidro recobertos com óxido de estanho dopado com flúor (TCO) foram estudados usando a teoria de escala dinâmica proposta por López *et al.* [Phys. Rev. Lett. **84**, 2199 (2000)]. As amostras foram crescidas por Ferreira *et al.* [Appl. Phys. Lett. **88**, 244102 (2006)] usando a técnica de epitaxia por paredes quentes e as propriedades de escala da interface foram investigadas neste trabalho através do espectro de potência, da função de correlação de alturas e da espessura da interface. A teoria usada possui seis expoentes de escala, sendo quatro independentes. Entretanto, para classificar qual regime de crescimento o sistema obedece deve-se analisar três desses expoentes, a saber, α , α_{loc} e α_s relacionados com as flutuações globais, locais e do espectro de potência da interface, respectivamente. Os resultados mostram que o sistema estudado apresenta comportamento de escala anômalo caracterizado pelo expoente de rugosidade global diferente da rugosidade local. Mais precisamente, em acordo com a teoria usada, encontramos um regime de crescimento com interfaces facetadas caracterizadas por $\alpha_{loc} = 1$ e $\alpha \neq \alpha_s > 1$. Essa previsão da teoria de escala anômala foi corroborada através de microscopia de força atômica das amostras. Conjeturamos que efeitos não-locais originados pela desordem inicial imposta pelo substrato amorfo são os fatores que originam o comportamento de escala anômalo.

Abstract

NASCIMENTO, Fábio Santos. M. Sc., Universidade Federal de Viçosa, February, 2010. **Characterization of CdTe thin films using anomalous scaling theory.** Adviser: Silvio Costa Ferreira Junior. Co-Advisers: Sukarno Olavo Ferreira and Maximiliano Luis Munford

Cadmium telluride films grown on glass substrates covered by fluorine doped tin oxide (TCO) were studied by generic dynamical scaling theory proposed by López *et al.* [Phys. Rev. Lett. **84**, 2199 (2000)]. The samples were grown by Ferreira *et al.* [Appl. Phys. Lett. **88**, 244102 (2006)] using hot wall epitaxy and the interface scaling properties were investigated in this work using the power spectrum, height-height correlation function, and interface width. The theory adopted has six scaling exponents, but only four of them are independent. However, in order to classify which growth regime the system follows one should analyze three of these exponents, namely, α , α_{loc} and α_s which are related to the global, local, and power spectrum fluctuations, respectively. The results show that the studied system exhibit anomalous scaling behavior characterized by global roughness exponent different from the local one. Actually, in agreement with the adopted theory we have found a growth regime ruled by faceted interfaces, characterized by $\alpha_{loc} = 1$ and $\alpha \neq \alpha_s > 1$. This prediction of the anomalous scaling theory was corroborated by atomic force microscopy of the samples. We conjecture that non-local effects, caused by the initial disorder imposed by the amorphous substrate, rule the anomalous scaling.

Capítulo 1

Introdução

O grande avanço tecnológico na área de produção de dispositivos semicondutores tais como transistores, diodos e lasers foi devido, em grande parte, ao surgimento e evolução de técnicas de crescimento epitaxial de filmes finos cristalinos. Epitaxia é qualquer técnica na qual ocorra a formação de um sólido cristalino sobre um substrato. Estas técnicas proporcionam um controle preciso das características físicas dos filmes crescidos como, por exemplo, espessura, qualidade morfológica, composição e dopagem [1, 2, 3].

A técnica de epitaxia por paredes quentes (HWE - *Hot Wall Epitaxy*) foi empregada neste trabalho para obtenção de filmes de telureto de cádmio (CdTe) crescido sobre substratos de vidro recobertos com óxido de estanho dopado com flúor ($\text{SnO}_2 : \text{F}$), um óxido condutor transparente muito usado na construção de células solares. Esta configuração permite estudar o CdTe em suas aplicações mais promissoras. Entre elas, a fabricação de células solares de CdTe. Estudos teóricos estimam uma eficiência máxima de 27% na conversão de energia solar para a energia elétrica ao considerar células solares de CdTe, enquanto a fabricação comercial tem apresentado uma eficiência de conversão de cerca de 16% [4, 5]. Vale ressaltar que o termo epitaxia não é necessariamente usado quando o crescimento é feito em um substrato amorfo, como o vidro. Nesse caso não há estrutura no substrato a ser copiada. Todavia, o uso do termo epitaxia é usado indiscriminadamente uma vez que os processos físicos

relevantes (adsorção, difusão, etc.) dominam o crescimento.

HWE é uma técnica que opera na região de alto vácuo ($10^{-7} - 10^{-6}$ Torr) e o crescimento se dá pela incidência de um feixe atômico ou molecular sobre um substrato aquecido. Os átomos constituintes do feixe que incide sobre o substrato formam uma camada cristalina, ou seja, um filme epitaxial. Dessa forma, o crescimento por HWE é governado principalmente pela cinética dos processos de superfícies (adsorção, dessorção e difusão) ocorrendo quando o feixe incidente reage com as camadas mais externas do substrato. Uma desvantagem da técnica HWE é o fato de possuir somente uma fonte de evaporação, então essa técnica exige que o material a ser depositado possa ser evaporado congruentemente, ou seja, sem dissociação da molécula ao evaporar [6, 7]. Este é o caso do CdTe na faixa de temperatura e pressão utilizados.

Devido às condições de temperatura e alto-vácuo, o processo de crescimento por epitaxia ocorre longe do equilíbrio termodinâmico e proporciona o ordenamento atômico resultante dos processos cinéticos de superfície, os quais dependem fortemente da estrutura e da atividade química da superfície do substrato. Assim, mesmo que o substrato inicial seja perfeitamente liso a morfologia resultante do crescimento pode ser altamente rugosa [8]. Por isso, existem interesses tecnológicos para entender as origens da rugosidade de filmes finos, pois a rugosidade afeta diretamente a qualidade de diversos dispositivos micro e optoeletrônicos.

A dinâmica da rugosidade fornece informação a cerca dos processos que atuam no crescimento da superfície e a descrição quantitativa dessa dinâmica é baseada em leis de escala, as quais refletem a invariância de escala do problema [9, 10]. Estudos prévios sobre a análise de escala de CdTe feitas na UFV publicados por Leal *et al.* [11], Ferreira *et al.* [12] e Mata *et al.* [13] mostram o caráter auto-afim da morfologia das superfícies de filmes de CdTe crescido em vidro e o efeito da temperatura na fase inicial da dinâmica de crescimento. Em geral, superfícies auto-afins são esperadas quando a evolução da interface é controlada por processos de superfícies locais. Assim, a rugosidade de superfície frequentemente obedece propriedades de escala simples [9].

Sobre a afirmação de auto-afinidade, invariância de escala prediz a mesma dinâmica para as escala locais e globais. Porém, esta afirmação não é necessariamente válida. Assim, quando não obedecidas, as propriedades de escala são não triviais e o sistema apresenta o que na literatura é chamado de rugosidade anômala [14]. Entre outros trabalhos experimentais [15, 16], este comportamento anômalo foi observado em CdTe por Mata *et al.* [13] estudando a evolução das correlações laterais no crescimento. Uma nova teoria de escala dinâmica foi proposta por Ramasco *et al* [17] a fim de incluir à teoria usual [9] este comportamento anômalo. Nesta proposta, a teoria de escala é formulada no espaço de Fourier em termos do espectro de potência do perfil de alturas, também chamado fator de estrutura [18]. Esta escala genérica admite como subclasse todas a formas conhecidas que a escala dinâmica pode assumir desde que invariância de escala das correlações existam [19]. A origem física das diferentes formas de escala anômala ainda não foi claramente resolvida [20, 21] e muitos dos trabalhos publicados na última década dedicaram-se a identifica-la em crescimento de filme finos [15, 16, 22, 23, 24, 25]. O objetivo deste trabalho consiste em usar essa nova abordagem de escala para fazer uma caracterização completa da evolução morfológica das superfícies dos filmes finos de CdTe crescido em vidro. Os resultados dessa dissertação complementam os trabalhos publicados anteriormente e permitem classificar a universalidade e comportamentos de escala da dinâmica de crescimento de CdTe sobre vidro.

Essa dissertação está organizada de acordo com a seguinte estrutura: no capítulo II, será apresentado uma descrição geral das técnicas de crescimento e dos processos físicos mais importantes no crescimento epitaxial; no capítulo III, as ferramentas matemáticas usadas na caracterização da dinâmica de crescimento de interface serão definidas; no capítulo IV, são apresentados alguns modelos de crescimento que foram implementados a fim de auxiliar o entendimento das ferramentas definidas no capítulo III e testar a validade dos programas computacionais elaborados para a caracterização. Os resultados obtidos da caracterização experimental dos filmes de CdTe serão apresentados no capítulo V. Conclusões e perspectivas são discutidas brevemente no capítulo VI.

Capítulo 2

Crescimento de Cristais

O objetivo deste capítulo é introduzir a idéia de epitaxia e as técnicas de crescimento de cristais pertinentes a este trabalho. Para isso, epitaxia por feixe molecular será discutida mais amplamente por tratar se de uma técnica mais elaborada e servirá como base para o entendimento da epitaxia por paredes quentes que é a técnica usada nos experimentos que analisamos. Além do mais, este capítulo procura oferecer uma visão atomística dos processos físicos que ocorrem no crescimento de filmes finos e como os diferentes modos de crescimento são obtidos ao variar as condições de crescimento, ou mais especificamente, a temperatura.

2.1 Epitaxia

Por definição, cristal constitui um conjunto de átomos preenchendo o espaço de forma altamente ordenada, formando uma rede. A menor unidade que se repete e origina a rede é chamada de célula primária e a grandeza que caracteriza essa célula primária é chamada de parâmetro de rede [26]. A Figura 2.1 ilustra a estrutura cristalina do CdTe (rede cúbica de face centrada), material estudado neste trabalho, cujo parâmetro de rede $a = 6,481 \text{ \AA}$.

O termo cristal é puramente idealizado no sentido de que não existem materiais

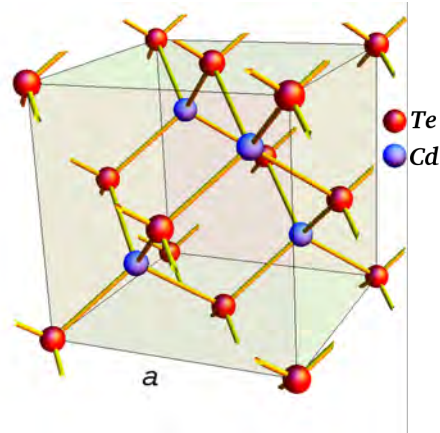


Figura 2.1: Estrutura cristalina do CdTe.

com redes cristalinas perfeitas. Geralmente, os materiais são formados com muitos defeitos estruturais em maior ou menor quantidade, dependendo da técnica e condições de crescimento. Esses defeitos afetam a qualidade elétrica, eletrônica e/ou ótica desse material que terá um impacto direto em suas aplicações tecnológicas [3]. Cada vez mais, os novos dispositivos semicondutores são criticamente dependentes da perfeição e pureza dos cristais que os constituem. Conseqüentemente, nas últimas décadas isso estimulou o desenvolvimento de uma variedade de métodos de crescimento de cristais que possibilitassem produzir a pureza e perfeição exigida pelos novos dispositivos. Uma abordagem foi usar um material cristalino como uma semente sobre a qual se depositaria o material adicional na forma de um filme fino a fim de obter propriedades no filme que fossem superiores às daquelas do substrato inicial. Se o filme fino resultante apresenta uma estrutura cristalina, o crescimento é denominado epitaxial [27, 28]. Assim, epitaxia designa a formação de cristais sobre um substrato cristalino. Porém, a definição mais recente generaliza as primeiras idéias de epitaxia e refere-se a qualquer técnica na qual ocorra a formação de um sólido cristalino sobre um substrato. Neste trabalho tem-se um exemplo de epitaxia sobre um substrato amorfo (vidro).

Epitaxia, em comum com todas as outras formas de crescimento de cristais, é uma mudança de fase bem controlada que leva a um sólido cristalino [2]. Conseqüentemente, o depósito crescido epitaxialmente consiste na criação de uma nova fase. Isto é realizado através de processos físicos atuando entre as duas fases. Uma ilustração

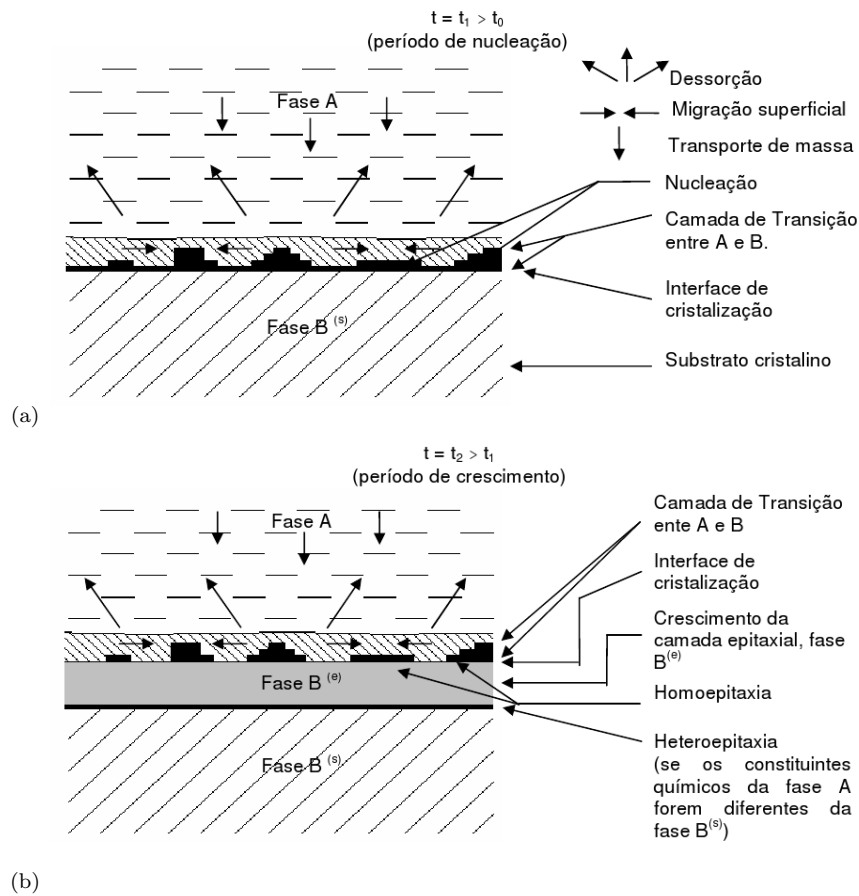


Figura 2.2: (a) Crescimento epitaxial em um tempo $t_1 > t_0$ que corresponde ao período de nucleação em que as primeiras camadas estão sendo crescidas e (b) um tempo $t_2 > t_1$ em que foi formado um filme epitaxial e as camadas crescem por homoepitaxia. Figura adaptada da referência [2].

esquemática da morfologia do crescimento epitaxial em diferentes períodos de tempo é mostrado na Figura 2.2, na qual os processos centrais relacionados a epitaxia são indicados. O crescimento do filme é mantido pelo transporte de massa das espécies constituintes da fase metaestável (Fase A) em direção a frente de crescimento, a qual será chamada daqui para frente de interface de cristalização. Na camada de transição entre as fases A e B ocorre o fenômeno de cristalização epitaxial baseado na mudança de fase entre a fase metaestável e a camada que define a interface de crescimento. Em geral, esta região interfacial é quimicamente e estruturalmente não-homogênea. Quando o sistema de duas fases é isoquímico (de mesma espécie química) em com-

posição, então o processo de crescimento epitaxial é chamado homoepitaxia. Por outro lado, no caso de sistemas heteroquímico (espécies químicas diferentes), o processo de crescimento é chamado heteroepitaxia.

Dependendo da fase de cristalização envolvida na epitaxia as seguintes denominações podem ser empregadas: epitaxia de fase sólida, epitaxia de fase líquida, epitaxia de fase vapor. Cada uma dessas técnicas possui suas vantagens e desvantagens que limitarão suas aplicações.

2.1.1 Epitaxia por Feixe Molecular

Epitaxia por feixe molecular (MBE - *Molecular Beam Epitaxy*) é uma técnica que se enquadra na classe de epitaxias por fase vapor e é considerada uma das técnicas mais sofisticadas na produção de filmes cristalinos de alta qualidade. Apesar das idéias iniciais de MBE desenvolvidas por volta de 1970 [29, 30] destinarem-se somente a aplicações em filmes semicondutores de alto grau de pureza, as condições de crescimento possibilitaram a utilização dessa técnica para crescimento de filmes epitaxiais de uma ampla variedade de materiais, abrangendo os metais, isolantes, supercondutores, além dos semicondutores. Porém, os materiais semicondutores ainda são os mais usados devido ao seu alto valor tecnológico na indústria eletrônica.

A idéia mais geral do funcionamento de um sistema MBE é usar uma fatia de semicondutor como substrato sobre a qual deve-se depositar o material adicional. O objetivo é obter filmes finos com propriedades elétricas ou óticas superiores àquelas do material do substrato [1, 3]. Tipicamente, o substrato é montado sobre um apoio feito de molibdênio. Este material tem uma alta condutividade térmica e pouca degaseificação¹ quando aquecido. Isto é importante para evitar contaminações com impurezas indesejadas durante o crescimento. A fim de melhorar a uniformidade do filme crescido, o substrato gira no plano normal à direção dos feixes moleculares. Um

¹Todo material exposto a pressão atmosférica é suscetível a absorver e adsorver gases provenientes do meio em que ele se encontra. Em vácuo, esses gases e vapores tendem a se libertar. A este fenômeno, chama-se degaseificação.

esquema envolvendo os elementos mais essenciais de um sistema MBE é mostrado na Figura 2.3(a). Podemos analisar esse sistema dividindo-o em três zonas nas quais ocorrem diferentes fenômenos físicos [2].

A primeira região é a zona de produção do feixe molecular, na qual estão presentes as células de efusão que contêm o material a ser evaporado. Existem vários tipos de células de efusão, mas de um modo geral, elas devem fornecer um feixe atômico ou molecular uniforme, estável, altamente puro (livre de impurezas) e que possa ser direcionado ao substrato. Uma célula de efusão, basicamente, é um cadinho² eletricamente aquecido que contém um material específico a ser evaporado. As moléculas evaporadas originam o fluxo molecular [31, 32, 33].

A segunda zona compreende a região em que os feixes de diferentes fontes se interceptam, formando uma mistura gasosa próxima à região do substrato. Os mecanismos físicos envolvidos nesta região ainda são pouco conhecidos.

Na terceira zona é onde se processa a cristalização, ou seja, onde os feixes moleculares provenientes das diversas células de efusão reagem com a camada mais externa do substrato, implicando na formação da camada epitaxial.

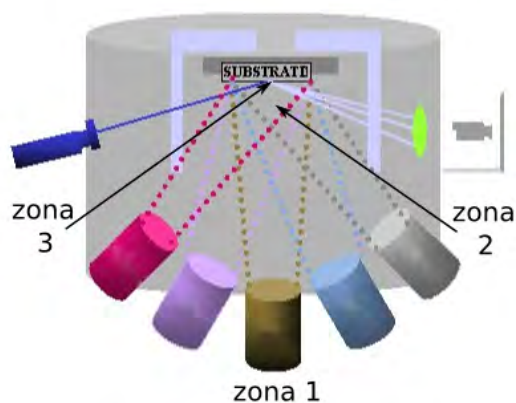


Figura 2.3: (a) Estrutura básica de um sistema de MBE.

²Cadinho é o reservatório contendo o composto que será evaporado. Possui formato cilíndrico ou cônico e, preferencialmente, fabricado de Nitreto de Boro Pirolítico (PBN - *Pyrolytic Boron Nitride*), mas, dependendo das aplicações, usa-se grafite ultra-puro ou quartzo.

O sucesso desta técnica se apóia no excelente controle das condições de crescimento. Por exemplo, para que seja garantida a pureza no sistema (sem contaminantes, tais como H_2 , CO_2 , CO e H_2O) o crescimento deve ser feito em região de ultra-alto vácuo. Logo, pressão inferior a 10^{-7} Torr é exigida nessa técnica (uma excelente revisão sobre as técnicas de obtenção e medição de vácuo pode ser encontrada na Ref. [34]). Devido à câmara de crescimento ser submetida a pressões tão baixas, o sistema deve ser composto por materiais ultra-puros. Os materiais envolvidos nesse sistema geralmente são aço-inoxidável, molibdênio e tântalo. O procedimento de limpeza usado nesses materiais é vital para evitar possíveis contaminações na amostra durante o crescimento. O ambiente de ultra-alto vácuo ainda possibilita que o crescimento seja monitorado em tempo real por métodos de análise de superfície, tal como difração de elétrons de alta energia por reflexão (RHEED - *Reflection High Energy Electron Diffraction*). RHEED representa uma poderosa ferramenta para análise e controle da dinâmica de crescimento epitaxial [35].

MBE também chama atenção pela característica única de controlar quais dos diferentes feixes moleculares estarão disponíveis para interagir com o substrato. Esse controle é feito pelos obturadores posicionados imediatamente à frente das células de efusão. Assim, abrindo ou fechando o obturador é possível ativar ou desativar uma dada célula de efusão. Esse mecanismo é crucial na construção das chamadas heterojunções, que é a superposição de materiais distintos formando uma interface mais ou menos abrupta. Isso é que possibilita ao sistema MBE produzir estruturas com propriedades elétricas, eletrônicas e ópticas diferentes do cristal inicial e com complexidades incomparáveis a outras técnicas mencionadas. Assim, uma grande variedade de estruturas pode ser construída, tais como poços quânticos, pontos quânticos, super-redes, lasers, etc [2, 3]. Devido à importância tecnológica que essa técnica vem assumindo nos últimos 20 anos, vários pesquisadores têm-se concentrado em desenvolver novos métodos e aprimorar a técnica de MBE a fim de fornecer a pureza e perfeição requerida pelos novos dispositivos.

2.1.2 Epitaxia por paredes quentes

Nesta técnica o crescimento ocorre em alto-vácuo (10^{-3} a 10^{-7} Torr) a partir de uma fonte única. A existência de somente uma fonte limita o crescimento a compostos que evaporam congruentemente. Por exemplo, um composto binário AB com evaporação congruente deve produzir moléculas de AB ao ser aquecido, ou pelo menos, vapor de átomo A e B separados, mas em quantidades que mantenham o equilíbrio estequiométrico e voltem a formar molécula AB sobre o substrato. CdTe é um exemplo deste material que evapora congruentemente a baixas temperaturas. As vantagens de um sistema de HWE são: facilidade de implementação, baixo custo, controle da taxa de crescimento, espessura e qualidade do filme.

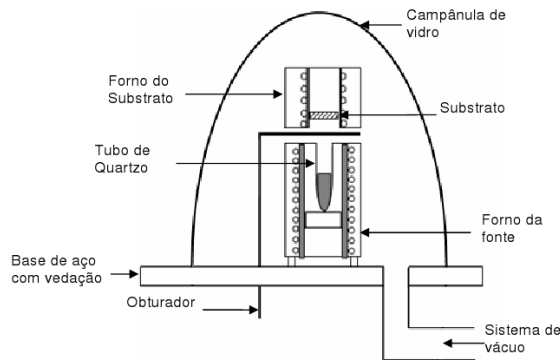


Figura 2.4: Estrutura básica de um sistema de HWE.

Na Figura 2.4 apresentamos um esquema do sistema de epitaxia por paredes quentes. O fluxo molecular é produzido pela evaporação do composto no tubo de quartzo e direcionado para o substrato posicionado imediatamente acima da célula de efusão. A célula de efusão e o substrato possuem fornos diferentes para que o controle de temperatura seja independente. A presença do obturador entre os fornos permite o controle do início e do término do crescimento. A título de ilustração os sistemas MBE e HWE do laboratório de epitaxia da UFV são mostrados na Figura 2.5.

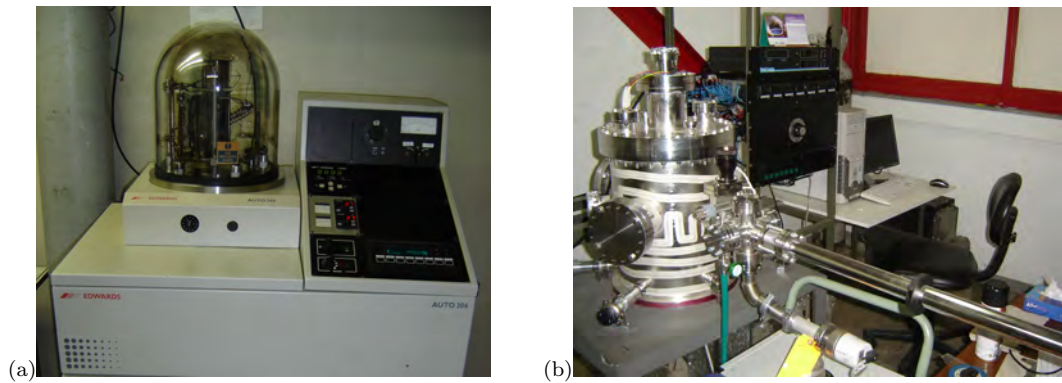


Figura 2.5: (a) Foto do sistema HWE e (b) MBE do laboratório de epitaxia da UFV.

2.2 Processos atômicos em MBE

O processo de crescimento do filme fino consiste de reações longe do equilíbrio termodinâmico que ocorrem na superfície do substrato. Os processos mais importantes que governam o crescimento são: deposição, desorção e difusão. Estes são os processos que conduzem à formação das estruturas na interface sólido-vapor durante a epitaxia [36]. O processo de deposição atômica sobre o substrato perturba o estado de equilíbrio da superfície. Como, geralmente, o substrato se encontra aquecido, os átomos da superfície podem romper suas ligações químicas com seus vizinhos e assim se movimentarem ao longo da superfície. Esse processo muda a morfologia do filme e tenta restabelecer o novo estado de equilíbrio minimizando o número de ligações pendentes (ou energia livre superficial).

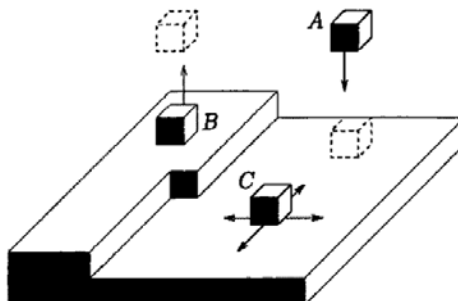


Figura 2.6: Processos atômicos ocorrendo no crescimento de filmes finos por MBE.

2.2.1 Deposição

Já foi comentado que a célula de efusão no sistema de MBE é a responsável por gerar o feixe atômico ou molecular e que este deve ser direcionado para o substrato. Um átomo ou molécula do vapor chega a uma posição aleatória da interface e forma ligações com a superfície do substrato. Este processo é denominado deposição e está esquematizado na Figura 2.6 pela partícula *A*. A partícula recém chegada pode ser adsorvida quimicamente (incorporada efetivamente à superfície através de ligações covalentes, por exemplo) ou pode realizar adsorção física (interage fracamente com a superfície através de forças de Van der Waals) podendo facilmente quebrar essa ligação (evaporar) ou difundir-se sobre a superfície. Este átomo ou molécula fracamente ligado é dito ser um adátomo. Uma visão mais detalhada do processo de deposição é dada por *Michely e Krug* [37]. Um átomo emitido da célula de efusão e que se encontra próximo do substrato tem uma energia cinética da ordem de 0,1 eV. À medida que o átomo se aproxima da superfície, ele é acelerado pelo potencial atrativo do substrato. A energia cinética adquirida pela partícula é da ordem da energia coesiva, ou seja, energia requerida para remover um átomo do cristal. Assim, para que o átomo fixe ao invés de ser refletido pela superfície, uma fração considerável de sua energia total deve ser dissipada na colisão e isso é feito gerando vibrações na rede cristalina (fônons).

2.2.2 Dessorção

Este é um efeito que compete com a deposição no sentido que as condições de crescimento podem provocar a expulsão de átomos da interface de crescimento, partícula *B* da Figura 2.6. A probabilidade de dessorção depende de quão forte o átomo está ligado à superfície do cristal. A força da ligação depende do tipo de átomo e da geometria local da superfície onde o átomo está fixo. A taxa de dessorção é sensível às mudanças na temperatura do substrato, pois este é um processo termicamente ativado e, conseqüentemente, é intensificado com o aumento da temperatura.

2.2.3 Difusão

Difusão de superfície é um processo termicamente ativado que possibilita aos átomos se moverem sobre a superfície do filme crescendo, partícula C da Figura 2.6. Isso permite incorporar átomos em sítios mais estáveis da rede o que favorece a construção de uma estrutura cristalina de melhor qualidade. Este é um mecanismo decisivo na ciência de crescimento de cristais. Para que um átomo sobre a superfície difunda para a próxima posição da rede, ele deve superar o potencial que existe entre duas posições vizinhas dessa rede. Para isso, uma energia E_0 é requerida para a difusão e sua origem microscópica reside na vibração da rede cristalina devido à temperatura do substrato. A próxima seção discute o efeito da difusão no processo de crescimento.

2.3 Modos de crescimento

A migração de adátomos sobre a superfície (difusão) é o mais importante entre todos os processos cinéticos, pois permite o crescimento em multicamadas. Isso exige que adátomos atravessem a borda de terraços. Para isso, deve-se superar uma barreira existente nessa região. Essa barreira de canto foi observada independentemente por Erlich *et al.* [38] e Schwoebel *et al.* [39] em experimentos nos quais adátomos na borda dos degraus tinham probabilidade maior de migrar para dentro do terraço que para a base do terraço, mesmo que a base seja energeticamente favorável. A Figura 2.7(a) ilustra a barreira de canto encontrada pelo átomo no degrau. Assim, essa barreira gera uma corrente ascendente com uma característica puramente de não-equilíbrio, pois provoca um efeito inverso ao da relaxação superficial e o átomo tende a permanecer sobre o terraço em que foi depositado. Dentro deste contexto, a barreira de Ehrlich-Schwoebel (ES) permite diferentes modos de crescimento em função da temperatura:

- *Crescimento por fluxo de degrau* (Fig. 2.7(b.I)): No crescimento em temperaturas suficientemente altas, todos os átomos são capturados pelos degraus existentes e não ocorre a nucleação sobre platôs. Nessas condições, novos degraus

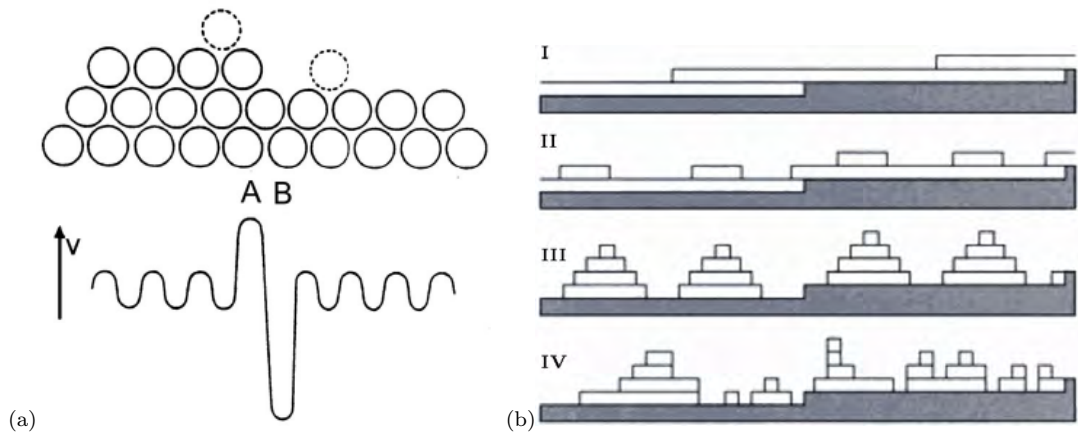


Figura 2.7: (a) Barreira de canto de degrau encontrado pelo átomo que se difunde na superfície. Os pontos *A* e *B* indicam os pontos de instabilidades e estabilidades para o átomo. (b) Diferentes modos de crescimento podem ser obtidos variando-se a temperatura de crescimento do cristal.

não são criados na superfície durante o crescimento e somente os degraus se movem lateralmente com uma velocidade média imposta pela taxa de deposição e pelo espaçamento entre os degraus.

- *Crescimento camada-por-camada* (Fig. 2.7(b.II)): Diminuir a temperatura permite a formação de ilhas sobre o terraço. As ilhas coalescem e a nucleação da segunda camada ocorre quando, somente, a primeira está completamente preenchida. As condições de nucleação da segunda camada são então idênticas àquelas do substrato original e uma fase oscilatória na morfologia da superfície é observado.
- *Crescimento tridimensional* (Fig. 2.7(b.III)): Ao reduzir mais a temperatura, os átomos que chegam ao topo das ilhas formam novos núcleos atômicos e outros núcleos atômicos se formarão em cima desses novos, e assim por diante. Formação piramidal (ou “mounds”) leva a um crescimento constante de camadas atômicas expostas e dessa forma um aumento da espessura em relação ao crescimento camada por camada.
- *Crescimento auto-afim* (Fig. 2.7(b.IV)): Em temperaturas suficientemente baixas

a difusão também é baixa e os adátomos se fixam na proximidade do sítio onde foram depositados. Isto produz interfaces sem um comprimento de escala lateral característico, ou seja, interfaces com aparência desordenada. Estas superfícies são auto-afins, o que significa que a morfologia é estatisticamente auto-similar sob ampliações. Neste regime de crescimento a espessura da interface inicialmente aumenta em lei de potência no tempo e depois satura.

Capítulo 3

Caracterização de Interface

Até aqui abordamos técnicas de crescimento de filmes finos e procuramos entender os processos físicos que atuam no crescimento em um nível microscópico. Este capítulo se propõe a fazer uma revisão das ferramentas necessárias para a caracterização de filmes via teoria de escala dinâmica, na qual a invariância de escala é o conceito fundamental. Porém, investigar o crescimento epitaxial de filmes finos crescidos em laboratório exige o monitoramento da evolução morfológica do filme que, por sua vez, depende de técnicas sofisticadas de microscopia. Por isso, as técnicas de Microscopia de Força Atômica (AFM) e perfilometria também serão abordadas no final deste capítulo.

3.1 Fractais

Os estudos de superfícies irregulares e/ou fragmentadas tais como o contorno de uma folha de macieira, do litoral, de uma montanha, de uma interface em crescimento de cristais e outros fenômenos na natureza que não são descritos adequadamente pelas formas geométricas euclidianas foram iniciados por Benoit B. Mandelbrot na década de 70 [40]. Para isso, Mandelbrot extrapolou o conceito de dimensão euclidiana para dimensões fracionárias e estabeleceu o conceito de fractal. Uma das formas de reconhecer um objeto como fractal é verificar se ele apresenta auto-similaridade, no

sentido de que ampliações ou reduções desses objetos não alteram o padrão. Note, por exemplo, que o galho de uma árvore se parece com a árvore (uma parte é similar ao todo). Em analogia, objetos fractais matemáticos podem ser construídos explorando o processo de recursividade. O triângulo de Sierpinski, por exemplo, pode ser obtido a partir de um triângulo equilátero totalmente preenchido de lado ℓ_0 , Figura 3.1(a), e a cada iteração k um triângulo equilátero de lado $\ell_{k-1}/2$ é removido de cada um dos triângulos restantes totalmente preenchido. Note que fractais também podem ser construídos adicionando partes do objeto. Essa construção garante que uma parte do objeto é idêntica ao todo e esses objetos possuem auto-similaridade determinística.

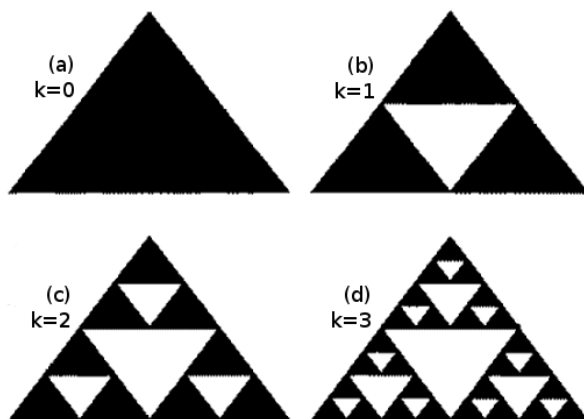


Figura 3.1: Ilustração da construção do triângulo de Sierpinski. O objeto fractal é obtido após um número infinito de iterações.

A afirmação de que uma parte repete o todo implica na existência de uma mudança de escala isotrópica (mesmo fator de escala em cada direção do espaço) que ao ser aplicada a uma parte do objeto resultará em um novo objeto semelhante ao original. No entanto, existem objetos para os quais a invariância se mantém apenas sob uma mudança de escala anisotrópica, ou seja, diferentes fatores de escala para cada direção do espaço. Tais objetos são chamados auto-afins. Da mesma maneira que foi feito para objetos auto-similares, pode-se construir objetos auto-afins de maneira recursiva. Como exemplo, considere a diagonal da Figura 3.2(a) e a estrutura mostrada na Figura 3.2(b). O procedimento consiste em substituir, a cada iteração k , toda

diagonal pela estrutura mostrada na Figura 3.2(b). Operações de rotação e inversão podem ser necessárias para garantir a continuidade da interface resultante. Note que uma transformação de escala isotrópica da parte destacada não retorna o objeto da iteração anterior Figura 3.2(b). Neste caso, necessita-se uma transformação anisotrópica, aumentando horizontalmente a caixa por um fator $b_1 = 4$ e verticalmente por um fator $b_2 = 2$.

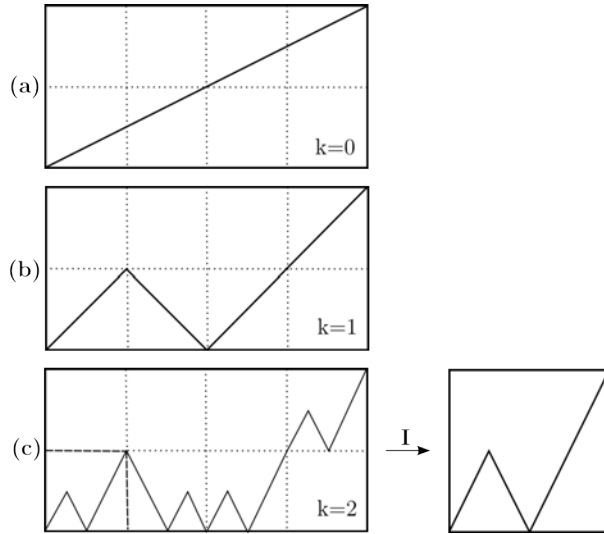


Figura 3.2: Construção de um objeto auto-afim determinístico. O objeto auto-afim é obtido após infinitas iterações.

Seja a relação

$$h(x) = b^{-\alpha}h(bx), \quad (3.1)$$

em que b é um fator de escala e α é um expoente que fornece uma medida quantitativa da invariância de escala da função $h(x)$. De acordo com a Eq. (3.1), se a coordenada x é reescalada por um fator arbitrário b então a altura h deve ser reescalada por um fator b^α para produzir um perfil com as mesmas propriedades estatísticas da curva original. Superfícies auto-similares têm os mesmos fatores de escala e, portanto, $\alpha = 1$. Para superfícies auto-afins tem-se $\alpha < 1$. No caso do objeto auto-afim mostrado na Figura 3.2, temos $b_1 = b^\alpha = 2$ e $b_2 = b = 4$ e, portanto, $\alpha = 1/2$. Esses resultados implicam que para caracterizar a morfologia de uma interface auto-afim, é suficiente fornecer seu expoente de rugosidade α . Interfaces auto-afins são observadas em vários modelos e em

vários sistemas experimentais que variam de crescimento biológico [41, 42], frente de propagação de fluido [43] ao crescimento de filmes finos [9], entre inúmeros exemplos. Isto justifica a importância do desenvolvimento feito por Mandelbrot. O capítulo 4 destina-se a apresentar e caracterizar alguns desses modelos de crescimento. As ferramentas usadas no processo de caracterização serão definidas nas próximas seções deste capítulo.

3.2 Invariância de escala

Quando invariância de escala é proposta ou observada para um sistema específico, matematicamente estamos tratando de funções $f(x_1, x_2, \dots)$ que satisfazem a seguinte relação

$$bf(x_1, x_2, \dots) = f(b^{a_1}x_1, b^{a_2}x_2, \dots) \quad (3.2)$$

em que b é um fator de escala (parâmetro arbitrário) e $\{a_i\}$ são os expoentes de escala. Tais funções são chamadas *homogêneas generalizadas* [44]. A arbitrariedade de b nos permite, por exemplo, fazer a escolha $x_1 b^{a_1} = 1$, ou seja, $b = x_1^{-1/a_1}$. Assim, a função f que depende de n variáveis x_1, \dots, x_n é reduzida a uma função de escala \tilde{f} que depende efetivamente de $n - 1$ variáveis (3.3),

$$f(x_1, \dots, x_n) = x_1^{1/a_1} \tilde{f}(1, x_1^{-a_2/a_1} x_2, \dots, x_1^{-a_n/a_1} x_n). \quad (3.3)$$

Note que ao construir gráficos de $x_1^{-1/a_1} f(x_1, \dots, x_n)$ em função das $n - 1$ variáveis $x_1^{-a_n/a_1} x_n$, as curvas obtidas para diferentes valores de x_1 devem colapsar em uma única curva regida por \tilde{f} [45, 46].

Um caso especial da função homogênea generalizada tem-se quando $a_1 = a_2 = a_3, \dots, = a_n$, representando as funções homogêneas. Funções homogêneas são geralmente usadas para descrever matematicamente objetos invariantes sob mudança de escala de observação. A equação (3.1) discutida na seção anterior tem este propósito e é uma função homogênea generalizada com $n = 1$ (3.2).

É natural estender a noção de invariância de escala também para a dimensão

temporal quando surgem interesses em caracterizar a dinâmica da formação de interfaces. Assim, (3.1) deve ser generalizada para

$$h(x, t) = b^{-\alpha} h(bx, b^z t) \quad (3.4)$$

definindo o expoente dinâmico z . Aqui t denota o tempo de deposição e é assumido que a superfície inicial seja plana, ou seja, $h(x, t = 0) = 0$.

3.3 Lei de escala de Family-Vicsek

Para quantificar e caracterizar uma superfície rugosa pode-se medir as flutuações da altura em torno do seu valor médio. Para isso, a quantidade básica a ser analisada é a espessura global da interface,

$$W(L, t) = \overline{[h(x, t) - \bar{h}(t)]^2}^{1/2}, \quad (3.5)$$

em que a barra superior denota uma média sobre todas as posições x de um sistema com tamanho L . Portanto, $\bar{h}(t) = \frac{1}{L} \int_0^L h(x, t) dx$, e os *brackets* denotam uma média sobre diferentes realizações (amostras).

Desde que a altura da interface satisfaça à condição de auto-afinidade definida em (3.4), então temos a liberdade de reescrever a espessura de interface da seguinte forma:

$$W(L, t) = \left\langle \frac{1}{L} \int_0^L \left[b^{-\alpha} h(bx, b^z t) - \frac{1}{L} \int_0^L b^{-\alpha} h(bx', b^z t) dx' \right]^2 dx \right\rangle^{1/2}$$

Usando a arbitrariedade na escolha de b , escolhemos $b^z t = 1$ para encontrar:

$$W(L, t) = t^{\alpha/z} \left\langle \frac{1}{L} \int_0^L \left[h\left(\frac{x}{t^{1/z}}, 1\right) - \frac{1}{L} \int_0^L h\left(\frac{x'}{t^{1/z}}, 1\right) dx' \right]^2 dx \right\rangle^{1/2}.$$

Dessa última relação encontramos que

$$W(L, t) = t^{\alpha/z} f(L/t^{1/z}) \quad (3.6)$$

em que usamos

$$\int_0^L g\left(\frac{x}{C}\right) dx = C \int_0^{\frac{L}{C}} g(x) dx = \mathcal{G}\left(\frac{L}{C}\right).$$

Family e Vicsek propuseram os seguintes comportamentos assintóticos para a função de escala $f(u)$ [47]:

$$f(u) \sim \begin{cases} u^\alpha, & \text{se } u \ll 1 \\ \text{const}, & \text{se } u \gg 1 \end{cases} \quad (3.7)$$

em que α é o expoente de rugosidade global. Vários modelos mostram satisfazer a relação de escala de Family-Vicsek [9]. Esta hipótese de escala carrega as seguintes propriedades: Para $t \ll L^z$ (tempos curtos) a função de escala é constante implicando que o comprimento de interface cresce em lei de potência no tempo $W(L, t) \sim t^\beta$, em que o expoente de crescimento $\beta = \alpha/z$; Para $t \gg L^z$ (tempos longos) há saturação da espessura da interface e o valor de saturação cresce em lei de potência com tamanho do sistema, $W(L) \sim L^\alpha$. Para testar a validade da relação de escala (3.7) deve-se construir um gráfico da $W(L, t)/t^{\alpha/z}$ em função $L/t^{1/z}$ para colapsar as diferentes curvas em uma única curva que deve exibir as propriedades (3.7) da função de escala $f(u)$.

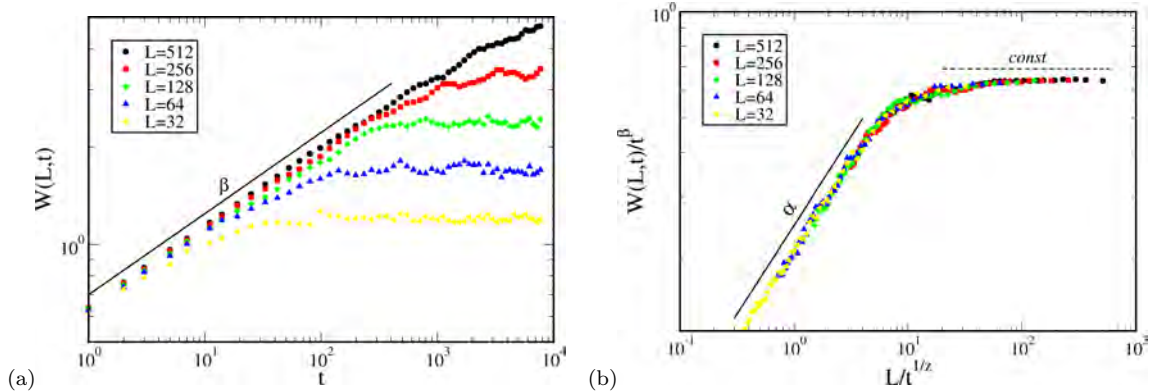


Figura 3.3: (a) Evolução da espessura da interface para o modelo de Family (ver Seção 4.2) representando o comportamento padrão para a rugosidade em função de tempo e diferentes tamanhos do sistema L e em (b) o colapso dessas curvas. O expoente de crescimento é definido $\beta = \alpha/z$.

A Figura 3.3(a) mostra o comportamento típico para a evolução da rugosidade em função do tempo para sistemas que seguem o comportamento de escala Family-Vicsek. Mais precisamente, a Figura 3.3 corresponde ao modelo de deposição aleatória

com relaxação de superfície que será discutido em detalhes na seção 4.2. A Figura 3.3(b) mostra o colapso das diferentes curvas de $W(L, t)$ e as linhas sólida e tracejada refletem os comportamentos limites da função de escala (3.7), em que dois regimes diferentes de escala ocorrem dependendo do valor do argumento $u \equiv L/t^{1/z}$.

Deve existir algum mecanismo na dinâmica de crescimento que provoca a saturação da rugosidade. Esses mecanismos envolvem correlações ao longo do sistema, ou melhor, um comprimento de correlação lateral (perpendicular à direção de crescimento da interface) que cresce em lei de potência no tempo $\xi \sim t^{1/z}$. Quando o comprimento de correlação alcança o tamanho do sistema $\xi \sim L$ a interface está completamente correlacionada, ou seja, quaisquer dois pontos dessa interface não são independentes, isso provoca a saturação da rugosidade. Os mecanismos que geram essas correlações dependem dos processos físicos que atuam no crescimento.

3.4 Universalidade

Até aqui definimos três expoentes (α , β e z) que caracterizam a evolução temporal de uma interface crescendo. O expoente de crescimento $\beta = \alpha/z$ caracteriza a evolução da interface em tempos curtos, o expoente de rugosidade global α caracteriza a interface após a saturação e o expoente dinâmico z caracteriza as correlações laterais no crescimento. Esses expoentes definem o que é chamado de classe de universalidade. A classe ou hipótese de universalidade pode englobar uma grande variedade de diferentes fenômenos. A razão para isso é que os expoentes críticos que caracterizam a universalidade não dependem de detalhes microscópicos do sistema e sim de características gerais tais como dimensão e simetrias do sistema [46]. A seguir usaremos os conceitos de invariância de escala para obter os expoentes de escala das equações estocásticas importantes em crescimentos de interface.

3.4.1 Argumentos de escala em equações estocásticas

Equações estocásticas são usadas em uma abordagem analítica que represente a evolução da superfície do filme crescendo no limite hidrodinâmico, ou seja, escalas de comprimentos e tempos suficientemente grandes para que as aproximações de tempo e de espaço contínuo sejam corretas. O aspecto geral dessas equações é dado por

$$\partial_t h(\mathbf{x}, t) = G(\mathbf{x}, h, t) + \eta(\mathbf{x}, t) \quad (3.8)$$

em que $h(\mathbf{x}, t)$ é a função que representa o perfil de alturas do filme, $G(\mathbf{x}, h, t)$ é uma função geral que apresenta os termos associados aos processos físicos relevantes na evolução da interface e $\eta(\mathbf{x}, t)$ é um termo de ruído branco que incorpora as flutuações aleatórias no processo de deposição. O ruído possui as propriedades de ser decorrelacionado no espaço e no tempo e ter média nula, ou seja:

$$\langle \eta(\mathbf{x}, t) \rangle = 0, \quad \langle \eta(\mathbf{x}, t) \eta(\mathbf{x}', t') \rangle = 2D \delta^d(\mathbf{x} - \mathbf{x}') \delta(t - t'), \quad (3.9)$$

em que $\delta^d(\mathbf{x} - \mathbf{x}')$ são funções delta.

Ao assumir $G(\mathbf{x}, h, t) = 0$, encontramos a descrição mais simples do crescimento de uma superfície rugosa dada pela equação:

$$\partial_t h(\mathbf{x}, t) = \eta(\mathbf{x}, t), \quad (3.10)$$

esta equação descreve o processo de crescimento sem nenhum tipo de interação entre o sítio de deposição e seus vizinhos, em outras palavras, descreve um crescimento sem correlações laterais no sistema. Apesar dela poder ser usada para descrever crescimentos a baixas temperaturas, ela se aplica a poucos sistemas de crescimento usuais [46].

Modelos mais reais são obtidos ao explorar argumentos físicos e/ou princípios de simetria para os termos que vão compor $G(\mathbf{x}, h, t)$. A equação (3.11) proposta por Edwards e Wilkinson [48] é o exemplo mais simples de um sistema respeitando invariância sob translação temporal, translação ao longo da direção normal e perpendicular ao crescimento, rotação e inversão ($h \rightarrow -h$).

$$\partial_t h(\mathbf{x}, t) = \nu \nabla^2 h + \eta(\mathbf{x}, t) \quad (3.11)$$

Esta equação é denominada equação EW e seus expoentes de escala definem a classe de universalidade EW (Edwards-Wilkinson). O termo $\nu\nabla^2 h$ da equação EW descreve o processo de relaxação, associado a tensão superficial, que suaviza a interface durante o crescimento. Apesar dessa equação possuir solução exata, podemos explorar o fato que as interfaces sejam auto-afins para obter os expoentes de escala que caracterizam esse modelo. Nesse caso, as interfaces devem ser invariantes sob as seguintes transformações

$$\mathbf{x} \rightarrow \mathbf{x}' \equiv b\mathbf{x}, \quad t \rightarrow t' \equiv b^z t \quad e \quad h \rightarrow h' \equiv b^\alpha h \quad (3.12)$$

para que a relação (3.4) seja obedecida.

Substituímos (3.12) em (3.11) e obtemos

$$\partial_t h = \nu b^{z-2} \nabla^2 h + b^{-d/2+z/2-\alpha} \eta,$$

em que d é a dimensão do espaço. Porém, os termos devem ser independentes do fator de escala b para garantir a invariância de escala. Assim, encontramos:

$$\alpha = \frac{2-d}{2}, \quad \beta = \frac{2-d}{4} \quad e \quad z = 2. \quad (3.13)$$

Os expoentes obtidos caracterizam a classe de universalidade EW, na qual para $d = 1$ encontramos $\alpha = 1/2$, $\beta = 1/4$ e $z = 2$.

Apesar desse método mostrar-se correto para obter os expoentes observados em simulações, ele não é bem sucedido quando aplicado em outros modelos que envolvem termos não-lineares. A equação de Kadar, Parisi e Zhang (KPZ) [49]

$$\partial_t h(\mathbf{x}, t) = \nu \nabla^2 h + \frac{\lambda}{2} (\nabla h)^2 + \eta(\mathbf{x}, t), \quad (3.14)$$

é um exemplo em que o termo não-linear leva a uma quebra de simetria de inversão ($h \rightarrow -h$) na equação EW. A equação KPZ foi resolvida analiticamente em uma dimensão ($d = 1$) via técnica de grupo de renormalização [50]. Ao aplicar argumentos de escala obtem-se $\alpha = (2-d)/3$ e $\beta = (2-d)/(4+d)$, expoentes bem diferentes dos valores exatos para $d = 1$ obtidos analiticamente:

$$\alpha = \frac{1}{2}, \quad \beta = \frac{1}{3} \quad e \quad z = \frac{3}{2}. \quad (3.15)$$

Um mecanismo físico muito importante em experimentos de crescimento de filmes finos por MBE é a difusão superficial de partículas. Uma equação proposta para descrever este mecanismo é a equação MH (Mullins-Herring) [51] dada por:

$$\partial_t h(\mathbf{x}, t) = -K \nabla^4 h + \eta(\mathbf{x}, t). \quad (3.16)$$

Como a equação é linear, aplicaremos novamente o simples argumento de escala para obter os expoentes. Reescalando e multiplicando ambos os lados por $b^{z-\alpha}$ encontramos:

$$\partial_t h = -K b^{z-4} \nabla^4 h + b^{(z-d-2\alpha)/2} \eta$$

e os expoentes

$$\alpha = \frac{4-d}{2}, \quad \beta = \frac{4-d}{8} \quad e \quad z = 4. \quad (3.17)$$

Este conjunto de expoentes caracteriza a classe de universalidade MH ou de difusão. Considerando o caso unidimensional temos $\alpha = 3/2$, $\beta = 3/8$ e $z = 4$. Note que obtemos $\alpha > 1$, porém fatores geométricos relacionados à dimensão fractal impõem a existência de um novo expoente $\alpha_{loc} \leq 1$ para sistemas auto-afins. Este comportamento anômalo será tratado nas próximas seções.

3.5 Rugosidade Anômala

Dentro da hipótese de escala de Family-Vicsek a auto-afinidade das interfaces impõe que as propriedades estatísticas do sistema não devem mudar quando analisadas em diferentes escalas, ou seja, analisar o sistema em grandes escalas de observação ($\epsilon \sim L$) ou pequenas escalas ($\epsilon \ll L$) deveria ser equivalente do ponto de vista estatístico. Porém, em muitos modelos teóricos [19, 22] e experimentos [15, 16, 23, 25, 52] os resultados observados são diferentes desta análise e, conseqüentemente, os expoentes que caracterizam a dinâmica do sistema. Para esclarecer essas idéias, são necessárias medidas globais e locais da interface. Por exemplo, a espessura global definida em (3.5) mede as flutuações globais da interface através da dispersão da superfície em torno do valor médio. De forma semelhante, podemos medir as flutuações locais

$w(\ell, t)$,

$$w(\ell, t) = \langle \langle (h(x, t) - \langle h \rangle_\ell)^2 \rangle_\ell \rangle^{1/2} \quad (3.18)$$

em que $\langle \dots \rangle_\ell$ denota uma média em x sobre um intervalo de tamanho ℓ . O que se observa em alguns modelos e experimentos é que as flutuações locais também são descritas pela Eq. (3.7), ou seja, $w(\ell, t) = t^\beta f_A(\ell/\xi(t))$, porém com uma função de escala modificada

$$f_A(u) \sim \begin{cases} u^{\alpha_{loc}}, & \text{se } u \ll 1 \\ const, & \text{se } u \gg 1 \end{cases} \quad (3.19)$$

em que o novo expoente de crescimento α_{loc} é chamado expoente de rugosidade local. Outra quantidade que escala da mesma forma como a espessura local da interface é a função de correlação da diferença de alturas [9],

$$G(\ell, t) = \overline{\langle [h(x + \ell, t) - h(x, t)]^2 \rangle}, \quad (3.20)$$

em que a barra superior denota um média sobre x e $w(\ell, t) \sim \sqrt{G(\ell, t)} = t^{\frac{\alpha}{z}} f_A(\ell/t^{1/z})$ [17]. Assim, $G(\ell, t)$ assume o seguinte comportamento:

$$G(\ell, t) \sim \begin{cases} t^{2(\alpha - \alpha_{loc})/z} \ell^{2\alpha_{loc}}, & \text{se } \ell \ll t^{1/z} \\ t^{2\alpha/z}, & \text{se } \ell \gg t^{1/z} \end{cases}. \quad (3.21)$$

Rugosidade anômala é caracterizada por $\alpha \neq \alpha_{loc}$. Esta diferença nos expoentes tem implicações importantes no comportamento de escala. Por exemplo, a espessura local w no regime estacionário passa a ter dependência com o tamanho L do sistema, $w(\ell, L) \sim \sqrt{G(\ell, L)} \sim \ell^{\alpha_{loc}} L^{\alpha - \alpha_{loc}}$, quando escalonamento anômalo governa a dinâmica de crescimento. Além dos mais, ao considerar modelos de crescimento que tenham exatamente os mesmos valores de α e z poderíamos erroneamente classificá-los na mesma universalidade. Porém, se esses modelos possuírem valores de α_{loc} diferentes, eles pertencem a classes de universalidade distintas.

Escalonamento anômalo implica em uma dinâmica não-trivial para as inclinações locais $\langle \langle (\nabla h)^2 \rangle \rangle$ e $G(\ell = a, t)$ [20, 21], em que a é o espaçamento da rede. Ao assumir o comportamento de escala de Family-Vicsek (escalonamento auto-afim), no qual $\alpha = \alpha_{loc}$, implica que $G(\ell = a, t) = \overline{\langle [h(\mathbf{x} + \mathbf{a}, t) - h(\mathbf{x}, t)]^2 \rangle} \sim const$ e que

a constante deve tender a zero quando $a \rightarrow 0$. Isto pode ser facilmente observado na Equação 3.21. Entretanto, em modelos de crescimento exibindo escalonamento anômalo as inclinações locais devem escalar como $G(a, t) \sim t^{2\kappa}$, em que o expoente $\kappa = (\alpha - \alpha_{loc})/z > 0$. No limite contínuo, $a \rightarrow 0$, $G(a, t) \simeq \langle (\nabla h)^2 \rangle a^2$ [21]. Logo,

$$\langle (\nabla h)^2 \rangle \sim t^{2\kappa} \quad (3.22)$$

Portanto, em qualquer modelo de crescimento, escalonamento anômalo está associado a um novo comprimento de correlação ξ na direção de crescimento e sua existência (ou ausência) pode ser investigada pelo cálculo da média do quadrado das derivadas locais da altura da interface $\langle (\nabla h)^2 \rangle$.

3.6 Espectro de Potência de Interfaces Rugosas

Um entendimento mais transparente da escala dinâmica anômala pode ser obtido por meio da transformada de Fourier da altura da interface [18]

$$\hat{h}(k, t) = L^{-1/2} \sum_x [h(x, t) - \bar{h}(t)] \exp(ikx) \approx L^{-1/2} \int [h(x, t) - \bar{h}(t)] \exp(ikx) dx,$$

no qual a média espacial da altura foi subtraída. Nesta representação o comportamento de escala da superfície pode ser investigado calculando-se o fator de estrutura ou espectro de potência,

$$S(k, t) = \langle \hat{h}(k, t) \hat{h}(-k, t) \rangle. \quad (3.23)$$

O cálculo do espectro de potência é uma forma alternativa para estimar os expoentes de escala. Apresenta vantagens sobre a análise no espaço real pois fornece informações das flutuações globais da interface (relacionada com a rugosidade global), dada por

$$W^2(L, t) = \frac{1}{L} \sum_k S(k, t) = \int \frac{dk}{2\pi} S(k, t), \quad (3.24)$$

e as flutuações locais da interface (relacionada com a função correlação $G(\ell, t)$), por meio da relação

$$G(\ell, t) = \frac{4}{L} \sum_{2\pi/L \leq k \leq \pi/a} [1 - \cos k\ell] S(k, t) \propto \int_{2\pi/L}^{\pi/a} \frac{dk}{2\pi} [1 - \cos k\ell] S(k, t). \quad (3.25)$$

Lopez *et al* [17] propuseram que o comportamento de escala para o espectro de potência possui a seguinte forma

$$S(k, t) = k^{-(2\alpha+d)} s(kt^{1/z}), \quad (3.26)$$

em que a função de escala $s(u)$ assume o seguinte comportamento assintótico

$$s(u) \sim \begin{cases} u^{2\alpha+d}, & \text{se } u \ll 1 \\ u^{2(\alpha-\alpha_s)}, & \text{se } u \gg 1 \end{cases} \quad (3.27)$$

em que α_s é um expoente novo e independente chamado de expoente de rugosidade espectral. Portanto, existem agora cinco expoentes ($\beta, \alpha, \alpha_{loc}, \alpha_s$ e z) descrevendo as propriedades de escala da superfície.

É importante notar que o comportamento de escala para o espectro de potência preserva a hipótese de escala Family-Vicsek (3.6) $W(L, t \ll L^z) \sim t^{\alpha/z}$ e $W(L, t \gg L^z) \sim L^\alpha$. Isso pode ser verificado ao resolver a integral (3.24) com a devida lei de escala para $S(k, t)$ (3.26) e (3.27). Porém, as propriedades locais da superfície podem mudar drasticamente levando a outros comportamentos de escala além de Family-Vicsek. Tais comportamentos de escalas são identificados ao extrair os expoentes críticos da função correlação

$$G(\ell, t) \sim \begin{cases} \int_{2\pi/L}^{\pi/a} \frac{dk}{2\pi} [1 - \cos k\ell] t^{(2\alpha+d)/z}, & \text{se } t^{1/z} \ll \ell \\ \int_{2\pi/L}^{\pi/a} \frac{dk}{2\pi} [1 - \cos k\ell] \frac{k^{2(\alpha-\alpha_s)} t^{2(\alpha-\alpha_s)/z}}{k^{2\alpha+d}}, & \text{se } t^{1/z} \gg \ell \end{cases} \quad (3.28)$$

e os resultados analíticos podem ser resumidos como segue:

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{se } \alpha_s < 1 \Rightarrow \alpha_{loc} = \alpha_s \\ \text{se } \alpha_s > 1 \Rightarrow \alpha_{loc} = 1 \end{array} \right\} \left\{ \begin{array}{l} \alpha_s = \alpha \Rightarrow \text{Family-Vicsek} \\ \alpha_s \neq \alpha \Rightarrow \text{Intrínseca} \\ \alpha_s = \alpha \Rightarrow \text{Superrugosidade} \\ \alpha_s \neq \alpha \Rightarrow \text{Facetada} \end{array} \right.$$

Portanto, $\alpha = \alpha_{loc} = \alpha_s < 1$ define o comportamento de escala Family-Vicsek. Isto pode ser verificado ao resolver (3.28) para obter

$$G(\ell, t) \sim \begin{cases} t^{2\alpha/z}, & \text{se } t^{1/z} \ll \ell \\ \ell^{2\alpha}, & \text{se } t^{1/z} \gg \ell \end{cases} = \ell^{2\alpha} g(\ell/t^{1/z}) \quad (3.29)$$

e a função de escala $g(u)$ comporta-se como

$$g(u) \sim \begin{cases} const, & \text{se } u \ll 1 \\ u^{-2\alpha}, & \text{se } u \gg 1. \end{cases} \quad (3.30)$$

Este resultado revela que as flutuações locais escalam com $\alpha_{loc} = \alpha$ como exigido por Family-Vicsek, ou seja, invariância sob qualquer escala de observação. Comportamento anômalo se torna presente para qualquer outro conjunto de expoentes que não respeita Family-Vicsek, ou em outras palavras, que viola a autoafinidade do sistema. Por exemplo, $\alpha_{loc} = 1$ e $\alpha = \alpha_s > 1$ definem o que é chamado de superrugosidade, $\alpha_{loc} < 1$ e $\alpha \neq \alpha_s$ definem rugosidade intrinsecamente anômala e $\alpha_{loc} = 1$ com $\alpha \neq \alpha_s$ é associado com surgimento de interfaces facetadas. Diferentemente do caso envolvendo comportamento de escala de Family-Vicsek, a existência de rugosidade anômala leva a um escalonamento não-trivial da função correlação,

$$G(\ell, t) = \ell^{2\alpha} g(\ell/t^{1/z}) \quad (3.31)$$

e a função de escala $g(u)$ não é mais constante para quaisquer valores baixos no argumento, mas comporta-se como

$$g(u) \sim \begin{cases} u^{-2(\alpha-\alpha_{loc})}, & \text{se } u \ll 1 \\ u^{-2\alpha}, & \text{se } u \gg 1. \end{cases} \quad (3.32)$$

3.7 AFM e Perfilometria

A microscopia de força atômica (AFM) é considerada a ferramenta padrão em ciências dos materiais para a caracterização da morfologia de superfície, porém a perfilometria que é uma técnica um pouco mais simples e barata, também é muito usada na caracterização de filmes finos. Microscopia por força atômica e perfilometria fazem parte da família de microscópios de ponta de prova que são usados para observar localmente diversas propriedades da superfície de uma amostra. A diferença fundamental entre essas técnicas reside na ponta de prova. Enquanto na AFM as pontas são nanoscópicas, em um perfilômetro elas são da ordem micrômetros. Consequentemente,

AFM gera imagens com resolução atômica, enquanto no perfilômetro a resolução lateral é algumas centenas de nanômetros. Outra diferença crucial é que AFM gera imagens tridimensionais da superfície da amostra, enquanto o perfilômetro obtém somente um perfil de alturas unidimensional. O princípio básico de funcionamento

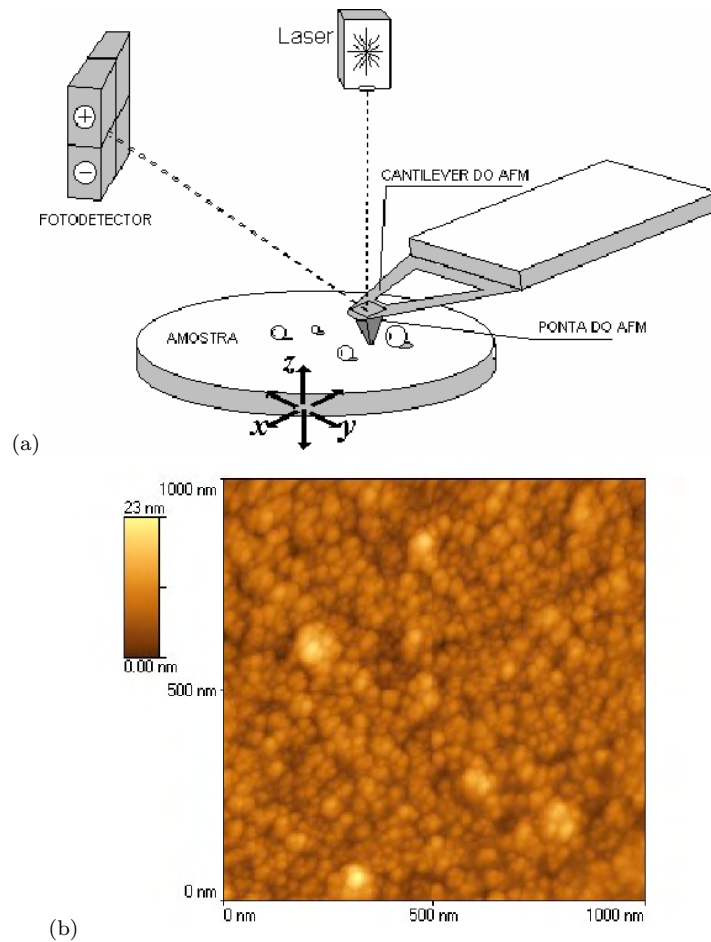


Figura 3.4: (a) Esquema ilustrativo de um AFM e (b) uma micrografia AFM.

dessas técnicas é semelhante: inicialmente, a amostra é colocada sobre um *scanner*. Uma determinada região desta amostra é varrida pela agulha (uma área no caso de AFM ou uma linha com o perfilômetro). A agulha (ponta ou sonda) é posicionada no cantilever (alavanca) e nas costas dele incide um feixe de laser que é refletido para um detector seccionado, como ilustrado na Figura 3.4(a). Qualquer movimentação da alavanca gera um deslocamento no laser sobre a face do detector. Assim, cada parte do detector recebe uma quantidade de luz diferente. Essa luz é transformada em corrente elétrica e ao se medir as diferenças de corrente, em uma dada configuração,

obtém-se informação sobre o quanto o cantilever foi defletido. A interação contínua desta agulha com a superfície provoca um encurvamento no cantilaver e isso fornece uma medida indireta da morfologia da área. A interação em questão pode ser atrativa ou repulsiva dependendo da distância entre a agulha e a superfície da amostra e diferentes modos de operação podem ser exercidos controlando esta distância. A morfologia é representada por uma imagem, chamada de micrografia. A resolução da imagem é dada pelo número de linhas e colunas da matriz de dados no caso do AFM e número de pontos numa linha no caso do perfilômetro. A Figura 3.4 mostra em (a) um esquema da técnica de AFM e em (b) uma micrografia de 300×300 píxeis (matriz com 300 linhas e 300 colunas).

Capítulo 4

Modelos de Crescimento

Do ponto de vista experimental, o crescimento de filmes finos é resultado de vários processos físicos atuando simultaneamente no crescimento, o que dificulta o entendimento da dinâmica de formação de interfaces por se tratar de um problema de muitas variáveis. Esta dificuldade se estende mesmo em técnicas que possibilitam um controle preciso das condições de crescimento, tal como a epitaxia por feixe molecular. Por isso, modelos computacionais são muito usados para entender melhor a dinâmica do crescimento e as características das camadas crescidas. Tais modelos incorporam os fatores que influenciam o crescimento, como por exemplo o tipo de substrato, a temperatura e pressão durante o crescimento, a taxa de deposição, a difusão e reevaporação de partículas do substrato, o tamanho do sistema e o tempo de crescimento. Este capítulo se destina a apresentar alguns modelos computacionais bem estabelecidos na literatura e aplicar as ferramentas matemáticas descritas no capítulo anterior a esses modelos.

4.1 Deposição Aleatória

Deposição aleatória é o modelo de crescimento mais simples. Uma rede regular de dimensão d e com L sítios simula o substrato. Cada sítio da rede carrega a informação da altura da interface. Em cada passo de tempo um sítio é escolhido aleatoriamente

e sobre ele é acrescido uma unidade a altura da interface. Isto simula a deposição de uma partícula “caindo verticalmente” sobre a superfície. Portanto, cada coluna cresce independentemente das outras com probabilidade $p = 1/L$ e a probabilidade de uma coluna ter altura h após a deposição de N partículas é dado por uma distribuição binomial

$$P(h, N) = \binom{N}{h} p^h (1-p)^{N-h}. \quad (4.1)$$

Isto permite uma solução exata para a espessura da interface definida pela equação (3.5):

$$W^2 \equiv \langle h^2 \rangle - \langle h \rangle^2 = Np(1-p) = \frac{N}{L} \left(1 - \frac{1}{L}\right). \quad (4.2)$$

Filmes finos crescidos por MBE crescem a velocidade da ordem de 1 *camada/s*, por isso é natural definir a deposição de L partículas como uma unidade de tempo. Assim, $t = N/L$ implica que $W(t) \sim t^{1/2}$. Logo, o expoente de crescimento

$$\beta = \frac{1}{2} \quad (4.3)$$

define a classe de universalidade DA (Deposição Aleatória), aqui α e z não são definidos. Alguns autores associam $\alpha = \infty$ e $z = \infty$, tal que tanto o tempo quanto a rugosidade de saturação são sempre infinitos.

A característica mais importante desse modelo é que a interface é completamente descorrelacionada, pois não existe nenhum mecanismo que gere correlações ao longo da interface. A interface resultante não é auto-afim, então a teoria de escala definida no capítulo anterior não pode ser aplicada. Entretanto, este modelo é importante por ser a base para a construção de modelos mais realísticos e por descrever o crescimento de interfaces por epitaxia a baixas temperaturas. Na DA, átomos grudam irreversivelmente sobre a rede cristalina, simulando as condições de crescimento que não permitem difusão, relaxação ou evaporação de partículas.

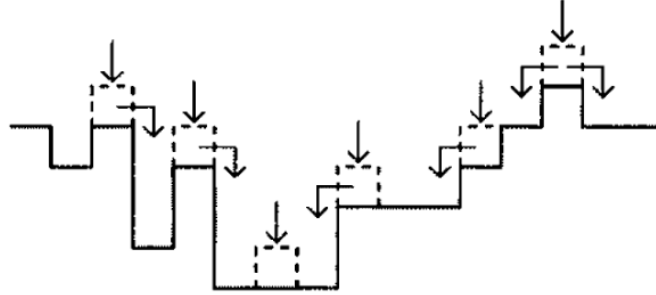


Figura 4.1: Regra de evolução para o modelo de Family em $d = 1$ com $s = 1$.

4.2 Modelo de Family

Neste modelo as partículas são depositadas em sítios escolhidos ao acaso e procuram na vizinhança do sítio de deposição aquele com menor altura, um mínimo local, onde se fixam permanentemente. A Figura 4.1 ilustra as regras de evolução do modelo de Family [53]. A procura pelo mínimo deve ser limitada, tal que a partícula procure dentro de uma vizinhança s . Esse processo de relaxação está relacionado com a redução da tensão superficial.

A Figura 4.2(a) mostra a evolução temporal da rugosidade para o modelo de Family em $d = 1 + 1$ usando $s = 1$ para a procura do mínimo e diferentes tamanhos do sistema. Este gráfico fornece o expoente de crescimento $\beta = 0,25$. Este resultado está em pleno acordo com a literatura [9]. A relaxação de partículas gera correlações laterais que levam à saturação da rugosidade. O gráfico da Figura 4.2(b) mostra a rugosidade de saturação em função do tamanho do sistema L . O expoente de rugosidade global obtido foi $\alpha \approx 0,5$. Usando a relação de escala $\beta = \alpha/z$, obtemos $z = 2$. Os expoentes de escala obtidos (α , β e z) concordam com aqueles obtidos com a equação de Edwards-Wilkinson (3.11). Logo, podemos concluir que o modelo de Family em $d = 1 + 1$ faz parte da classe de universalidade EW.

A Figura 4.2(c) mostra o gráfico da rugosidade local em função da escala em diferentes tempos de deposição. Desse gráfico obtivemos o expoente de rugosidade local, $\alpha_{loc} = 0,47$. É possível mostrar, usando tempo de deposição e tamanho do

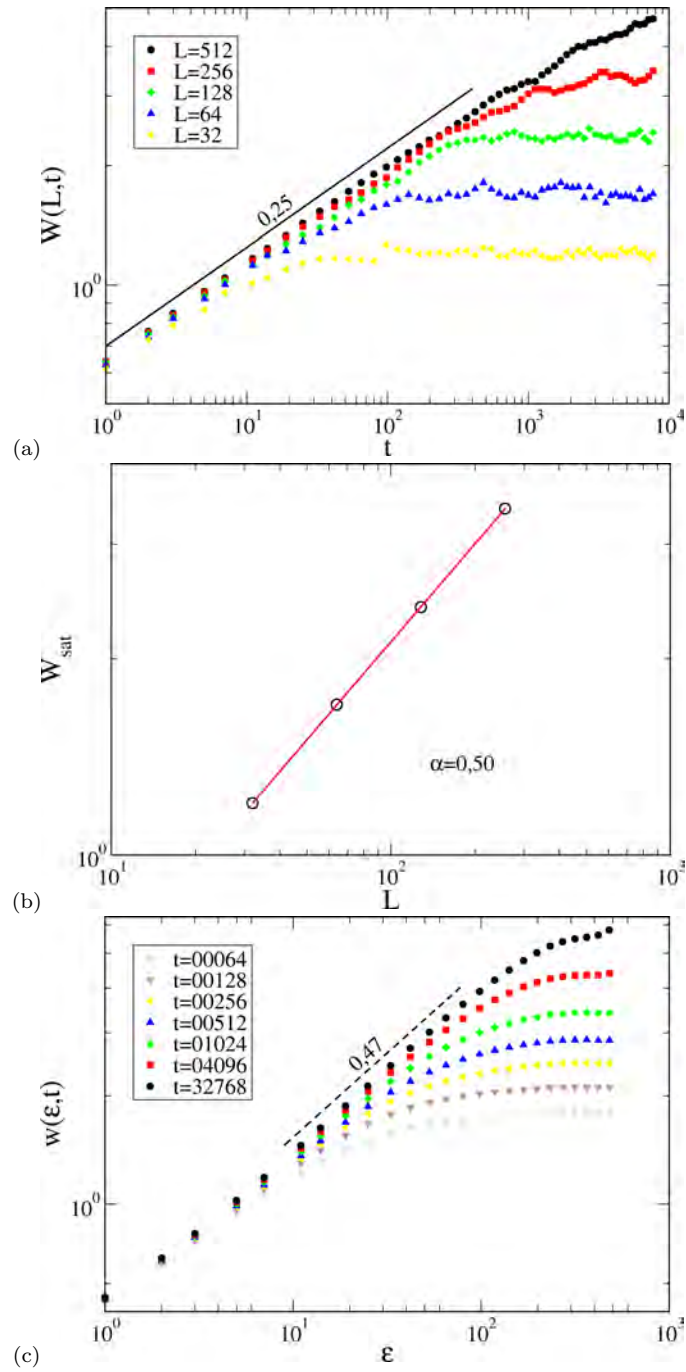


Figura 4.2: (a) Rugosidade em função do tempo para diferentes tamanhos do sistema. A linha serve como um guia para os olhos e tem inclinação 0,25. (b) Gráfico da rugosidade de saturação pelo tamanho do sistema e um ajuste dos pontos fornece $\alpha = 0,5$. (c) Gráfico da rugosidade local pelo tamanho da janela, para um sistema de $L = 10000$. A linha tracejada tem inclinação de 0,47. Esses gráficos foram gerados para 200 amostras independentes.

sistema maiores, que $\alpha_{loc} \rightarrow 0.5$. Dessa forma, o expoente de rugosidade global equivale ao da rugosidade local, $\alpha = \alpha_{loc}$, e este sistema obedece ao comportamento de escala Family-Vicsek.

4.3 Modelo de Kim-Kosterlitz ou deposição aleatória com recusa

O modelo proposto por Kim e Kosterlitz [54] possui a seguinte regra de evolução: um sítio i da rede é escolhido aleatoriamente e se a diferença de alturas entre o sítio escolhido e seus vizinhos, após a deposição, for menor do que um valor M , $|\Delta h| \leq M$, então a partícula é depositada no sítio sorteado, isto é, $h_i = h_i + 1$. Caso contrário, essa partícula é recusada e a deposição não ocorre. Este modelo simula a evaporação de partículas fracamente ligadas à superfície do substrato (dessorção). Para valores altos de M , a dinâmica do crescimento apresenta um crossover entre dois diferentes regimes de crescimento: deposição aleatória não correlacionada para tempos curtos e crescimento com correlações laterais para tempos longos.

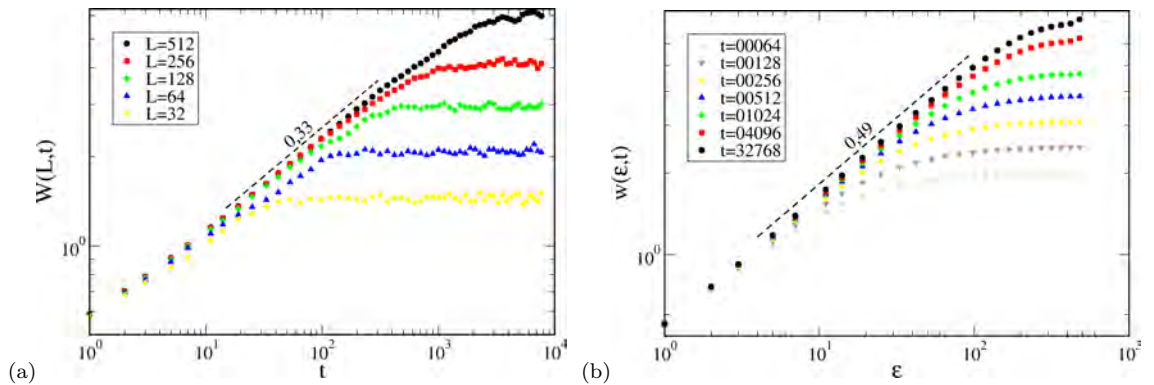


Figura 4.3: (a) Rugosidade em função do tempo para o modelo KK com diferentes tamanhos do sistema. A linha tracejada tem inclinação 0,33. Em (b) temos o gráfico da rugosidade local pelo tamanho da janela, para um sistema de $L = 10000$. A linha tracejada tem inclinação de 0,49. Gráficos gerados usando 200 amostras independentes.

A evolução temporal da rugosidade no modelo KK em $d = 1$ com $M = 1$ é mostrado na Figura 4.3(a). Deste gráfico obtivemos o expoente de crescimento $\beta \approx 0,33$. Na Figura 4.3(b) mostramos um gráfico da rugosidade local que fornece o expoente $\alpha_{loc} \approx 0,5$.

Na Figura 4.4(a) mostramos o gráfico do espectro de potência de um perfil gerado com o modelo KK com tamanho $L = 10^4$ e tempos de deposição variados. A linha tracejada tem inclinação $2\alpha_s + 1 \approx -1,95$, implicando que expoente de rugosidade espectral é igual ao local, $\alpha_s = \alpha_{loc} \approx 0,5$. Assumindo $\alpha = 0,5$, o colapso

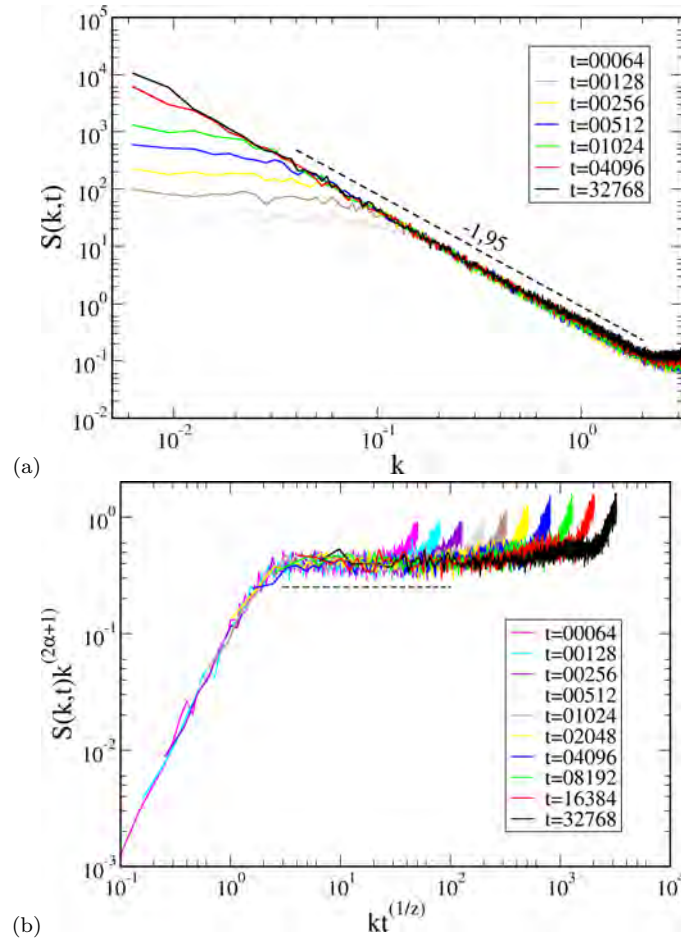


Figura 4.4: (a) Espectros de potência para o modelo KK em $d = 1$ em um sistema de tamanho $L = 10^4$ e diversos tempos de deposição. A linha tracejada tem inclinação de $-1,97$. (b) Colapso das curvas para diferentes L . A inclinação da reta é aproximadamente zero.

das curvas do espectro de potências, gráfico da Figura 4.4(b), foi obtido com sucesso para diferentes tempos de deposição. Isto evidencia que os expoentes usados estão corretos. Note que a linha tracejada com inclinação zero indica que $\alpha = \alpha_s$ e os desvios observados para valores altos do argumento $kt^{1/z}$ são devidos ao espaçamento de rede finito. Usando a relação de escala $\beta = \alpha/z$, obtivemos $z \approx 1,5$. Os expoentes de escala obtidos (α , β e z) concordam com aqueles fornecidos pela equação de KPZ (3.14). Logo, podemos concluir que o modelo de Kim-Kosterlitz em $d = 1$ pertence à classe de universalidade KPZ.

4.4 Equação de Mullins

Em MBE, os átomos difundem sobre a superfície do cristal, até alcançar uma posição energeticamente mais favorável. Para uma revisão dos mecanismos relevantes em altas temperaturas veja Makeev *et al.* (2002) [55]. No modelo proposto por Mullins [51] desconsidera-se qualquer outro processo além da difusão superficial. Assim, o número de partículas deve ser conservado e a dinâmica deve obedecer a equação de continuidade:

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{j}(\mathbf{x}, t). \quad (4.4)$$

A corrente $\mathbf{j}(\mathbf{x}, t)$ gerada pela difusão das partículas da interface é proporcional à diferença de potencial químico local $-\nabla\mu(\mathbf{x}, t)$. Este depende do número de ligações que devem ser quebradas para a difusão ocorrer. Mais especificamente, depende da curvatura local da superfície que, no limite hidrodinâmico, é proporcional a $-\nabla^2 h$. Assim, $\mathbf{j}(\mathbf{x}, t) \propto -\nabla^4 h(\mathbf{x}, t)$. Combinando este mecanismo de difusão com flutuações aleatórias que existem durante o processo de deposição, pode-se descrever o processo de crescimento por uma equação de Langevin da forma

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -K\nabla^4 h(\mathbf{r}, t) + \eta, \quad (4.5)$$

em que η é um ruído-branco, Eq. (3.9), simulando a aleatoriedade durante o crescimento. Esta equação pode ser resolvida analiticamente. Aqui resolveremos a equação

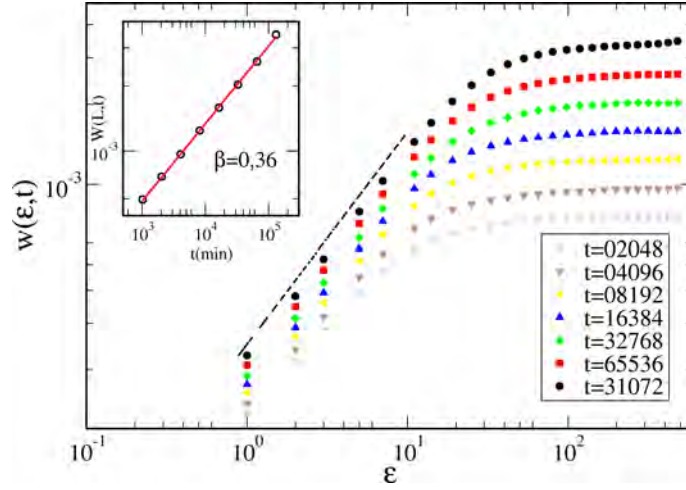


Figura 4.5: Gráfico da rugosidade local pelo tamanho da janela, para a equação de Mullins resolvida numericamente para um tamanho $L = 10000$. A linha tracejada tem inclinação de 0,9. No destaque mostramos a rugosidade global em função do tempo e o ajuste dos pontos que leva ao expoente $\beta \approx 0,36$. Usamos 20 amostras para a obtenção dos gráficos.

(4.5) numericamente. Muitos resultados experimentais são descritos bem por este modelo [56].

No destaque da Figura 4.5 mostramos a evolução temporal da rugosidade global da equação de Mullins e obtivemos o expoente de crescimento $\beta \approx 0,36$. O gráfico da Figura 4.5 mostra a rugosidade local que fornece o expoente de rugosidade local $\alpha_{loc} \approx 0,9$. Quando comparamos este gráfico com os já apresentados até aqui podemos perceber um deslocamento para cima nas curvas da rugosidade local em diferentes tempos. Esse é um sinal da presença de rugosidade anômala.

O gráfico do espectro de potência mostrado na Figura 4.6(a) fornece uma inclinação $2\alpha_s + 1 \approx 3,9$ e um expoente de rugosidade espectral $\alpha_s \approx 1,5$. Esta é outra evidência que este sistema apresenta rugosidade anômala, pois o comportamento de escala de Family-Vicsek exige que $\alpha = \alpha_{loc} = \alpha_s$. O fato de $\alpha_s > 1$ já quebra essa condição, pois $\alpha_{loc} \leq 1$. A caracterização completa da dinâmica do sistema exige conhecer os expoentes α e z . Entretanto, a inclinação aproximadamente nula da linha tracejada no colapso das curvas do espectro de potência, Figura 4.6(b), evidencia que

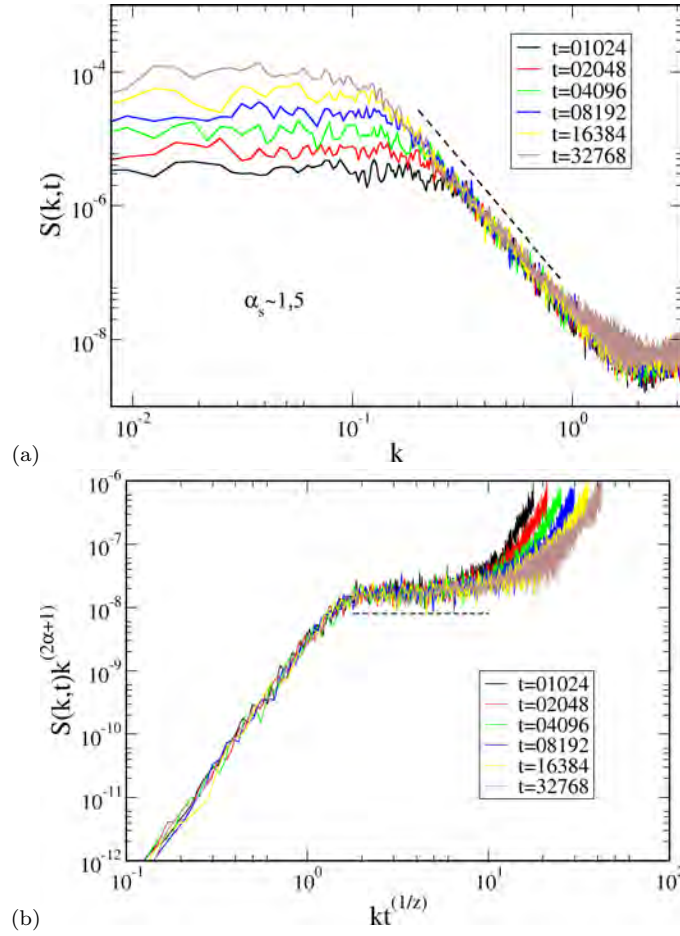


Figura 4.6: (a) Espectros de potência para um sistema de tamanho $L = 10^4$ e diversos tempo de deposição. A linha tracejada tem inclinação de $-3,9$. (b) Colapso das curvas para diferentes tempos. A linha tracejada serve como guia para os olhos e tem inclinação aproximadamente zero.

os expoentes α e α_s são iguais, ou seja, $\alpha \approx \alpha_s \approx 1,5$. Logo, $\alpha > \alpha_{loc} \approx 1$ comprova a existência de rugosidade anômala neste modelo. Para ser mais preciso, o sistema apresenta superrugosidade caracterizada por $\alpha = \alpha_s > 1$ e $\alpha_{loc} = 1$.

4.5 Modelo de Sneppen

Este é um modelo para simular a propagação de fluido em um meio poroso. Este modelo se torna particularmente interessante por exibir rugosidade anômala. Na

versão unidimensional do algoritmo, tem-se uma interface $h(x, t)$ definida sobre uma cadeia discreta $x = 1, 2, 3, \dots, L$ tal que para cada sítio está associado uma força de ancoramento local $\eta(x, h)$ dada por um ruído branco. Condições de contorno periódicas são utilizadas. A regra de crescimento consiste em encontrar o sítio com a menor força de ligação $\eta(x, h)$ entre os sítios que podem crescer sem violar as condições de restrição de alturas $|h(x) + 1 - h(x - 1)| \leq 1$ e $|h(x) + 1 - h(x + 1)| \leq 1$. Sobre esse sítio uma unidade é adicionada a h e um novo ruído aleatório η é associado ao sítio atualizado [43].

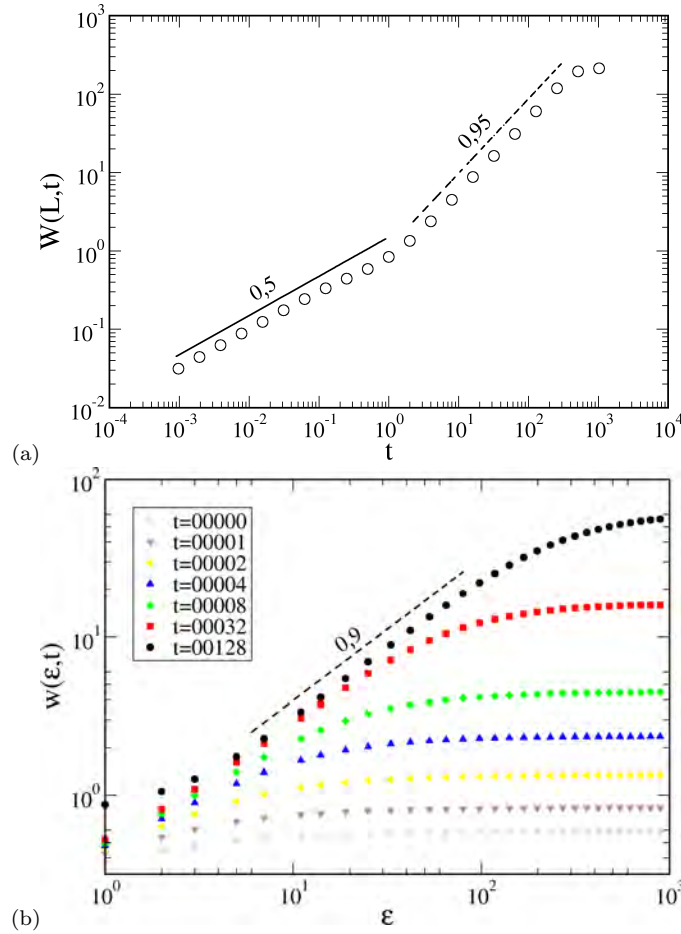


Figura 4.7: Rugosidade em função do tempo para o modelo de Sierpinski em uma rede $1d$ com $L = 2048$. A linha tracejada tem inclinação $0,95$. (b) Rugosidade local em função da escala. A linha tracejada tem inclinação de $0,9$. Usamos 20 amostras independentes para a obtenção dos gráficos.

A curva da rugosidade global em função do tempo é mostrada na Figura 4.7(a). Obtemos o expoente de crescimento $\beta \approx 0,95$. Isso informa a alta rugosidade no modelo em questão, ou melhor, diz quão rápido a interface torna-se rugosa com o tempo. O próximo passo é calcular os expoentes de rugosidade global e local e o espectro de potências. Observando o gráfico da Figura 4.7(b) notamos que o expoente da rugosidade local é de $\alpha_{loc} \approx 0,9$. Na verdade, outros resultados já apresentados na literatura mostram que a rugosidade local tende à unidade. Isso deverá ser percebido em simulações com redes maiores.

Na Figura 4.8(a) temos os espectros de potência referentes às simulações dis-

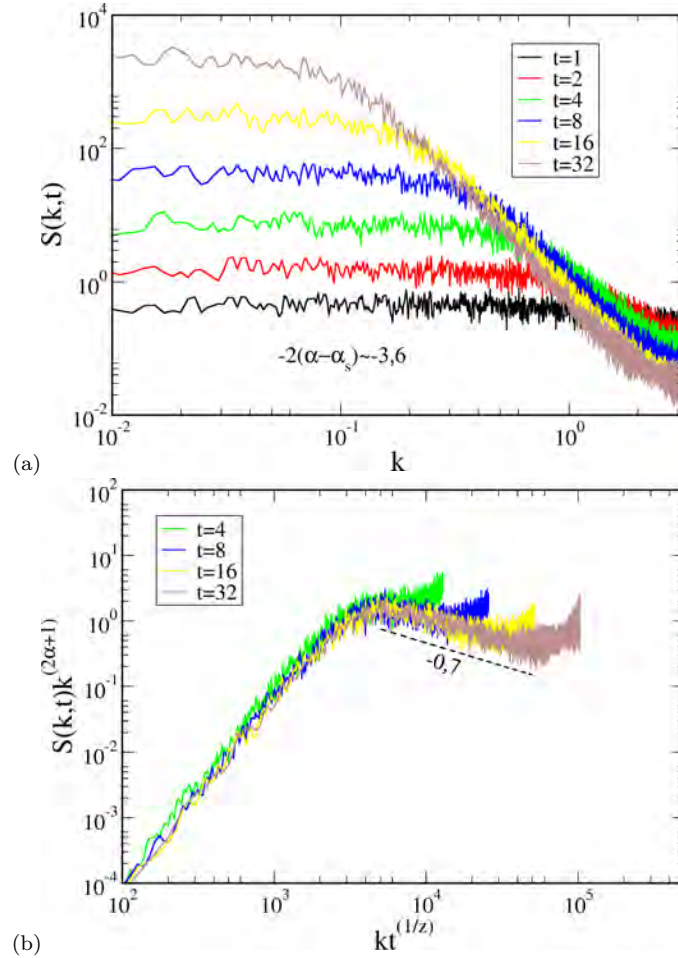


Figura 4.8: (a) Espectro de potência em diversos tempo de deposição. A linha tracejada tem inclinação de $-3,6$. (b) Colapso das curvas para diferentes tempos obtido usando $\alpha = 1$ e $z = 1$. A linha tracejada tem inclinação $-0,7$.

cutidas na Figura 4.7. A linha tracejada usada como referência tem inclinação de $-(2\alpha_s + 1) \approx -3,6$, implicando em $\alpha_s \approx 1,3$. Note que as curvas de $S(k, t)$ em tempos diferentes são deslocadas para baixo refletindo que $\alpha < \alpha_s$. Isto pode ser verificado de forma mais fácil na da Figura 4.8(b), na qual o colapso dos dados garante que $2(\alpha - \alpha_s) \approx -0,7$, implicando em $\alpha \approx 0,95$. O valor dos expoentes $\alpha \approx \alpha_{loc} \approx 1$ está relacionado com a forma facetada da interface [17]. Na Figura 4.9, mostramos a morfologia superficial do modelo sneppen para tempos de deposição diferentes, que confirma a estrutura facetada da interface.

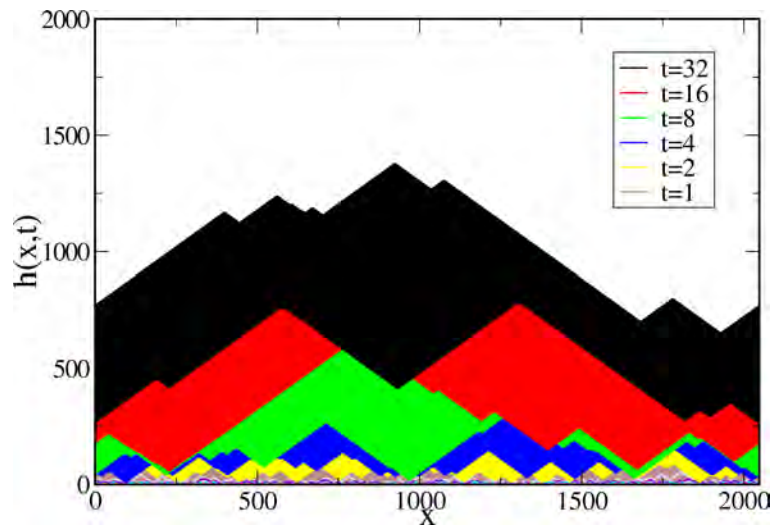


Figura 4.9: Evolução da interface no modelo de Sneppen.

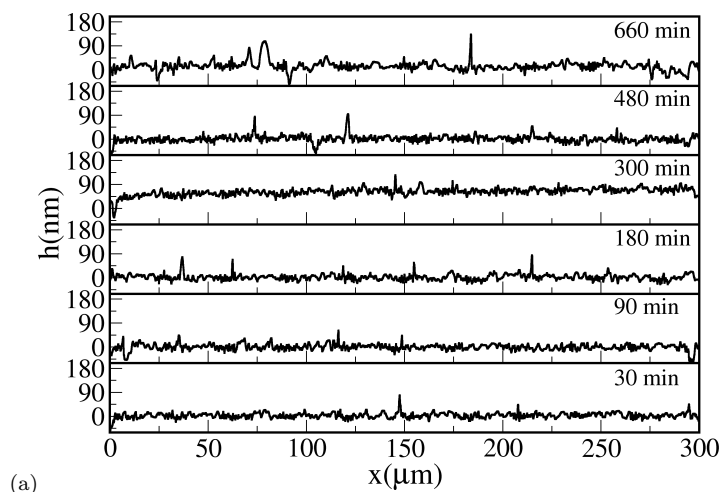
Capítulo 5

Resultados

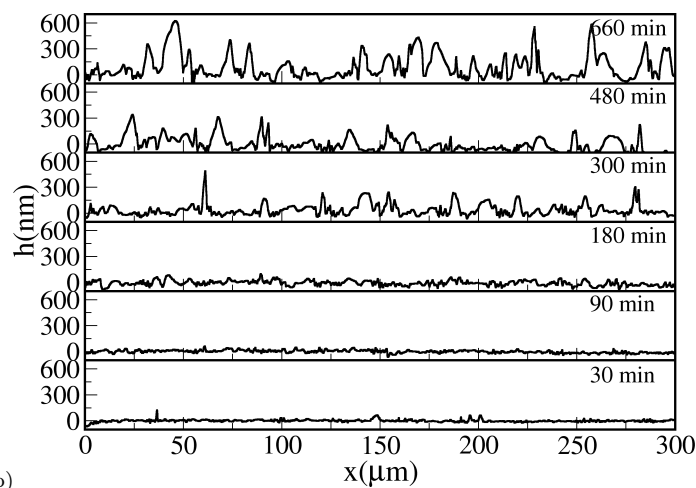
Para medir os expoentes que caracterizam a dinâmica de crescimento de filmes de CdTe pela técnica de epitaxia por paredes quentes e a dependência dessa dinâmica com a temperatura, amostras com diferentes tempos de crescimento variando de $t = 30$ min a 660 min e temperaturas do substrato variando de $T = 150^\circ\text{C}$ a 300°C foram crescidas por Ferreira *et al.* [12] e analisadas sob os conceitos de invariância de escala. Durante o crescimento, a temperatura da fonte foi mantida constante a 520°C para todas as amostras. Detalhes do procedimento de crescimento pode ser encontrado em [7, 11]. As amostras foram crescidas a uma taxa de 1.4 \AA/s e a caracterização estrutural e óptica destas amostras revelam que se trata de policristais com forte orientação preferencial na direção [111] [12]. Nesse capítulo a análise de escala é completada por meio de teoria de escala anômala baseada no espectro de potência.

5.1 Perfil das amostras

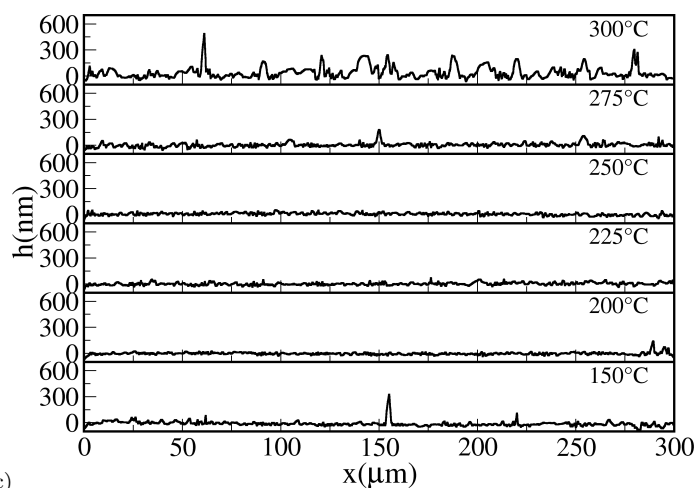
A técnica de perfilometria foi utilizada por Ferreira *et al.* [12] com o propósito de investigar a superfície de filmes de CdTe crescidos pela epitaxia de paredes quentes. Para garantir médias estatísticas e reprodutibilidade, vários perfis foram obtidos em diferentes regiões da amostra. Pelo menos 20 perfis com comprimento de $300 \mu\text{m}$ e 4570 pixels de resolução foram medidos para cada amostra, usando um perfilômetro



(a)



(b)



(c)

Figura 5.1: Perfis das amostras crescidas por Ferreira *et al.* [12]. Em (a) e (b) os perfis das amostras crescidas a temperaturas de 150°C e 300°C, respectivamente, em tempos variando de 30 - 660 min. Em (c) mostramos o perfil para diferentes temperaturas em um tempo fixo de 300 min.

(XP1-AMBIOS). Ao posicionar a amostra no perfilômetro, via de regra, existe uma inclinação em relação ao plano horizontal de calibração do perfilômetro. A inclinação do plano se superpõe ao perfil de rugosidade e deve ser eliminada num tratamento de dados realizado posteriormente. Nas Figuras 5.1(a) e (b) mostramos as interfaces das amostras crescidas em função do tempo para duas temperaturas diferentes (150°C e 300°C) e na Figura 5.1(c) mostramos a interface para um tempo de crescimento fixo de 300 min e diferentes temperaturas. Essas figuras deixam claro que o tempo e a temperatura de crescimento são parâmetros que intensificam a rugosidade. Quantificar essa dependência é o objetivo deste trabalho e será a tarefa das próximas seções deste capítulo.

5.2 Expoentes de escala

Os expoentes de escala são os ingredientes básicos para determinar, distinguir e compreender as diferentes classes de universalidade. Isso justifica a diversidade de trabalhos teóricos e experimentais devotados à obtenção desses expoentes nas últimas décadas [16, 23, 43, 47]. Neste trabalho, usaremos os métodos definidos e exemplificados nos capítulos anteriores para caracterizar a dinâmica de crescimento de CdTe sobre vidro. Alguns dos expoentes já foram obtidos em trabalhos anteriores [12, 13]. Porém, neste trabalho, propomos complementar esses estudos introduzindo uma nova quantidade que permite medir os expoentes obtidos anteriormente de forma independente além de permitir novas interpretações basedas em outros expoentes.

Na Figura 5.2 mostramos que a temperatura é um parâmetro importante no crescimento, que controla tanto o expoente β quanto o expoente κ definidos nas equações (3.6) e (3.22), respectivamente. Observamos que o aumento da temperatura favorece a formação de instabilidades no crescimento, caracterizados por $\beta > 1, 0$. O fato que o aumento da temperatura leva ao aumento do expoente β foi recentemente discutido por Ferreira *et al* [12] e observado em simulações Monte Carlo para crescimento de SiO₂ e Nb₂O₅ [57]. Os resultados apresentados por Ferreira *et al.* [12]

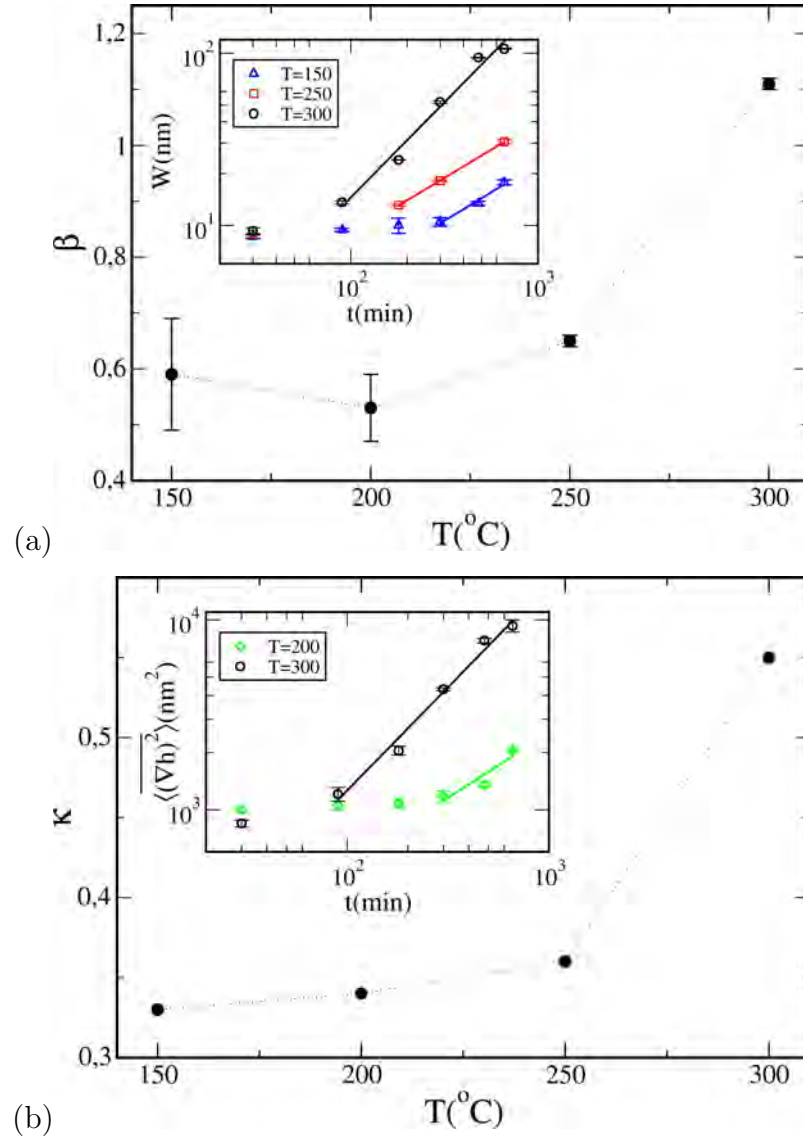


Figura 5.2: (a) Dependência do expoente de crescimento β com a temperatura, obtida diretamente da espessura global da interface em função do tempo mostrado na inserção da figura. (b) Dependência do expoente κ com a temperatura obtidas com as inclinações locais médias $\langle(\nabla h)^2\rangle \sim t^{2\kappa}$. Na inserção mostramos os dados e os respectivos ajustes em leis de potência.

usam o mesmo conjunto de amostras analisadas neste trabalho, porém os expoentes de crescimento β encontrados por eles diferem consideravelmente daqueles apresentados aqui. Neste trabalho observamos dois regimes de crescimento (inserções das Figuras 5.2(a) e (b)) na dependência em lei de potência para a espessura global de interface e inclinações locais, enquanto no trabalho anterior [12] essa análise não foi considerada e o expoente β foi obtido com o ajuste de todos os pontos da curva da espessura global em função do tempo. Nós associamos o primeiro regime de crescimento (pontos fora do ajuste) às limitações no processo de medida, pois a espessura global de interface está muito próxima da resolução vertical do perfilômetro. Portanto, concluímos que este regime deve ser descartado da análise de escala. Além disso, neste trabalho submetemos as amostras aos seguintes tratamentos de dados: remoção dos primeiros e últimos pontos do perfil e remoção da tendência na altura devido a calibração do perfilômetro. Além desses tratamentos de dados, Ferreira *et al.* [12] removeram picos de altura assumindo que seriam relacionados a poeira na superfície da amostra. Aqui tais amostras foram simplesmente descartadas.

O expoente dinâmico z é um outro expoente importante para a caracterização da dinâmica de crescimento de interface e foi anteriormente obtido por Mata *et al.* [13] para o mesmo conjunto de amostras analisados neste trabalho. Existem formas diferentes para a obtenção de z . Um procedimento comum é investigar as correlações laterais através da função correlação de dois pontos:

$$C(\epsilon, t) = \overline{\langle h(x + \epsilon, t)h(x, t) \rangle}. \quad (5.1)$$

A Figura 5.3 mostra o resultado dessa medida para $T = 300^\circ\text{C}$, em que a linha sólida é o ajuste de um decaimento exponencial simples

$$C(\epsilon, t) = C_0 + A_1 \exp\left(-\frac{\epsilon}{\xi}\right) \quad (5.2)$$

em que os parâmetros C_0 e ξ obtidos do ajuste são funções do tempo. O parâmetro ξ é o comprimento de correlação, que espera-se seguir um crescimento em lei de potência no tempo, $\xi(t) \sim t^{1/z}$, em que z é o expoente dinâmico. Este comportamento é verificado na inserção da Figura 5.3. Como as correlações crescem no tempo, então,

teoricamente, as correlações deveriam atingir o tamanho do sistema e isso implicaria na saturação da rugosidade a partir de algum tempo característico maior do que aqueles usados experimentalmente. Entretanto, limitações experimentais impedem a produção de amostras estáveis com tempo de deposição superior a 660 min, logo não observamos tal saturação na inserção da Figura 5.2(a). Ainda analisando a Figura

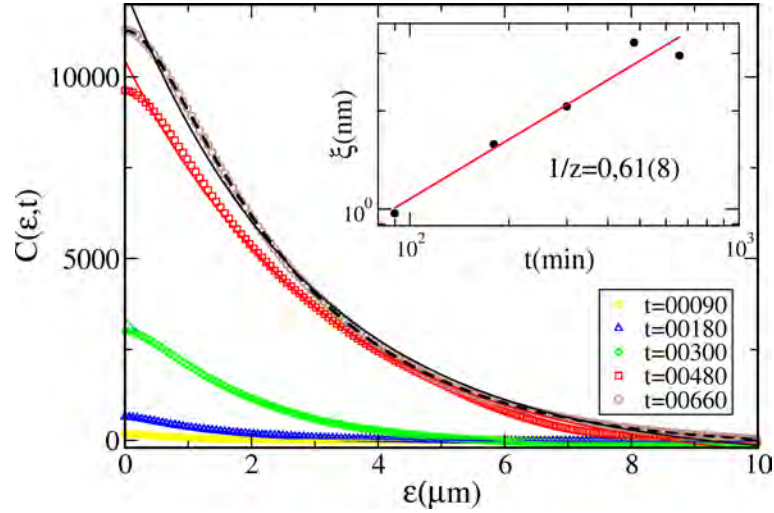


Figura 5.3: Função correlação de dois pontos para $T = 300^\circ\text{C}$. A linha contínua é o ajuste de um decaimento exponencial simples, enquanto a linha tracejada é o ajuste usando dois decaimentos exponenciais. Na inserção mostramos o comprimento de correlação em função do tempo para o caso da exponencial simples.

5.3, podemos notar que o decaimento exponencial simples não ajusta bem, principalmente, para valores de ϵ pequenos e as discrepâncias se agravam em outras curvas não mostradas aqui. Para contornar este problema, Mata *et al.* [13] propuseram o uso de um decaimento com duas exponenciais,

$$C(\epsilon, t) = C_0 + A_1 \exp\left(-\frac{\epsilon}{\xi_1}\right) + A_2 \exp\left(-\frac{\epsilon}{\xi_2}\right). \quad (5.3)$$

O ajuste em todas as curvas foi excelente, o que justificou seu uso (linha tracejada da Figura 5.3), porém a diferença nos resultados quando comparados a uma única exponencial são poucos significativos para $T = 300^\circ\text{C}$: $1/z = 0,61(8)$ usando exponencial simples e $1/z = 0,57(7)$ com duas exponenciais. Então, encontramos $z \approx 1,6$ enquanto Mata obteve $z \approx 3,2$, logo, os resultados gerados por esses dois trabalhos

são conflitantes. Essa contradição surge porque a estimativa do expoente dinâmico feita por Mata *et al.* descarta a região inicial da função de correlação para o cálculo de ξ . Essa análise corresponde aos comprimentos de onda (comprimento das flutuações características da interface) grande. Entretanto, a análise apresentada neste trabalho inclui basicamente apenas o decaimento inicial desconsiderado anteriormente, ou seja, uma análise de comprimentos de onda curtos. Os resultados gerados aqui foram confirmados através da abordagem principal desse trabalho em que exploramos relações de escala diferentes e análise do colapso das curvas do espectro de potência e função correlação da diferença de alturas em tempos diferentes. Assim, evidenciamos um possível equívoco na interpretação dos dados obtidos por Mata *et al.* [13].

Os expoentes de rugosidade local α_{loc} e espectral α_s foram medidos diretamente

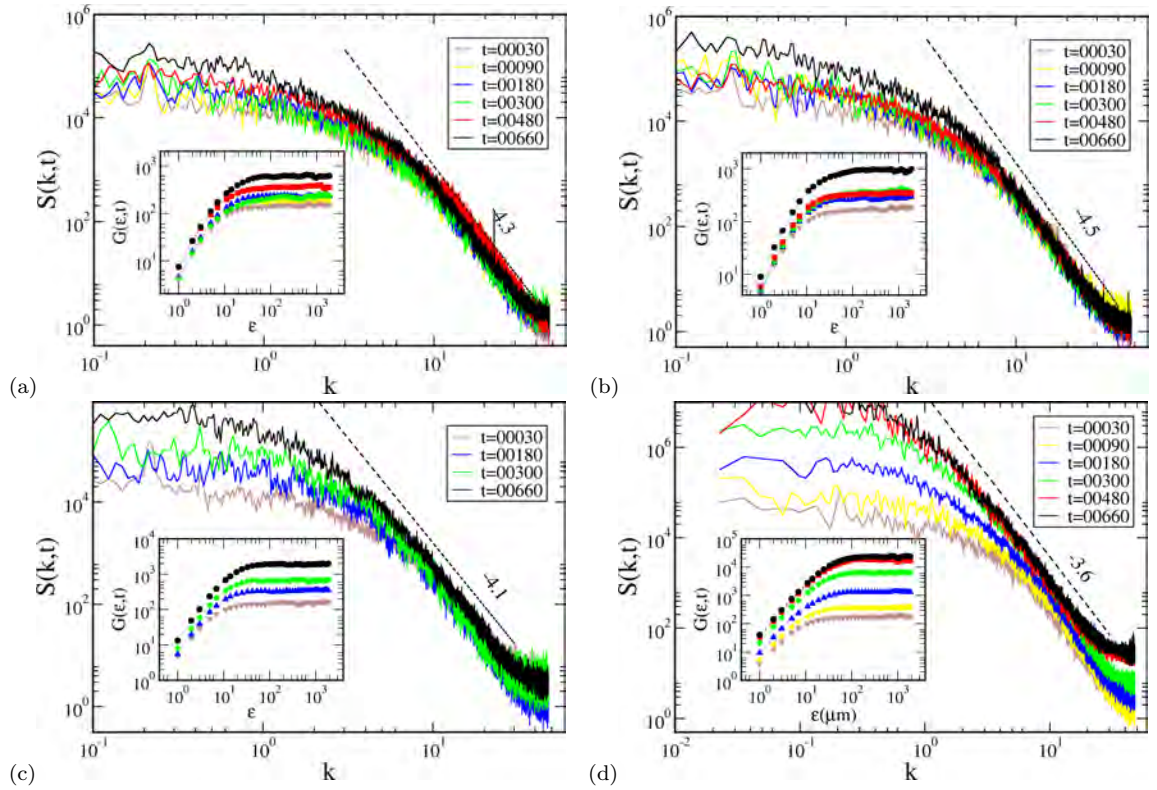


Figura 5.4: Espectros de potência para diferentes tempos de crescimento e temperaturas: (a) $T = 150^\circ\text{C}$, (b) $T = 200^\circ\text{C}$, (c) $T = 250^\circ\text{C}$ e (d) $T = 300^\circ\text{C}$. As inserções mostram as respectivas curvas para a correlação da diferença de alturas. A linha tracejada é um guia para os olhos e fornece a inclinação $2\alpha_s + 1$.

dos ajustes em lei de potência das curvas mostradas na Figura 5.4. As Figuras 5.4(a)-(d) mostram os espectros de potência e as correlações da diferença de alturas (inserções) para temperaturas de $T = 150^\circ\text{C}$, $T = 200^\circ\text{C}$, $T = 250^\circ\text{C}$ e $T = 300^\circ\text{C}$, respectivamente. O deslocamento para cima observado nas curvas do espectro de potência revela que o expoente de rugosidade global é maior do que o espectral. Esta observação revela a presença de escala anômala no sistema. Além do mais, os deslocamentos mais pronunciados revelam que o escalonamento anômalo é intensificado com o aumento da temperatura. A existência de escala anômala em nosso sistema também é indicado nas inserções da Figura 5.4 pelos deslocamentos das curvas em tempos curtos, lembrando que na hipótese de escala de Family-Vicsek [9] todas as curvas devem se superpor para tempos curtos.

Os expoentes de rugosidade local medidos diretamente na primeira década das inserções da Figura 5.4 estão no intervalo entre 0,7 e 0,8, reproduzindo os dados publicados anteriormente por Ferreira *et al.* [12]. Entretanto, de acordo com a hipótese de escala proposta por Ramasco *et al.* [17], o expoente de rugosidade espectral $\alpha_s > 1$ implica que $\alpha_{loc} = 1$. Esses valores de expoentes juntamente com a condição $\alpha \neq \alpha_s$ são associados com crescimento facetado [19, 16]. Para verificarmos se a teoria de escala de Ramasco *et al.* aplica-se ao crescimento de CdTe sobre vidro, usamos tanto α_{loc} medido quanto o previsto pela teoria.

Até aqui obtivemos medidas direta dos expoentes α_s , β e κ . Porém, uma caracterização completa da dinâmica de crescimento requer os expoentes α e z [17]. Já foi chamada a atenção que esses expoentes não são independentes e podemos obter o expoente z indiretamente por combinação das relações de escala $\beta = \alpha/z$ e $\kappa = (\alpha - \alpha_{loc})/z$, que fornece a seguinte relação [20, 16]:

$$z = \alpha_{loc}/(\beta - \kappa). \quad (5.4)$$

O cálculo do expoente dinâmico usando $\alpha_{loc} = 1$ é apresentado na Figura 5.5, na qual observamos que z diminui com a temperatura. Este resultado contradiz aqueles apresentados por Mata *et al.* [13], em que z cresce com a temperatura. Assim, diferentemente dos resultados apresentados por Mata *et al.* [13], o exposto neste

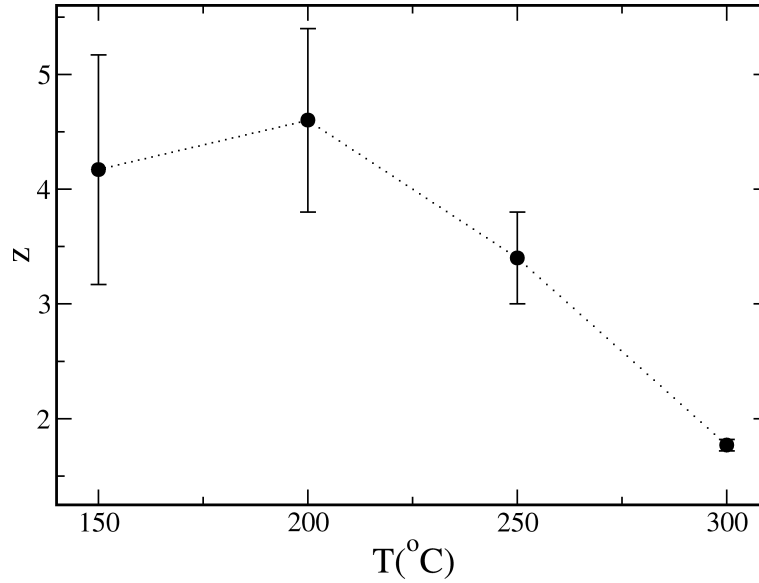


Figura 5.5: Expoente dinâmico z em função da temperatura obtida pela relação $z = \alpha_{loc}/(\beta - \kappa)$.

trabalho revela que as correlações se espalham mais rapidamente com o aumento da temperatura. Esta é uma observação relevante, pois está em concordância com o fato que a difusão de superfície é intensificada pelo aumento da temperatura. Entretanto, em um primeiro momento, poder-se-ia especular que o aumento da difusão de superfície produziria interfaces mais suaves, porém os resultados prévios para o expoente β contradizem isso. Na verdade, existem várias evidências em simulações de Monte Carlo mostrando que o aumento da temperatura, que leva a um aumento exponencial da taxa de difusão, proporciona o surgimento de instabilidades que são responsáveis pelo aumento da espessura da interface. Entretanto, esses casos não apresentam crescimento auto-afim e são caracterizados pela formação de morros que impõe um comprimento característico ao sistema.

A Figura 5.6 compara os expoentes de rugosidade α_s e α . O expoente α , que caracteriza a morfologia de superfície após as correlações alcançarem o tamanho do sistema, foi obtido indiretamente pela relação $\beta = \alpha/z$. Dentro da faixa de temperatura que analisamos, tanto o expoente α_s quanto o expoente α são maiores do que 1, mas $\alpha_s \neq \alpha$.

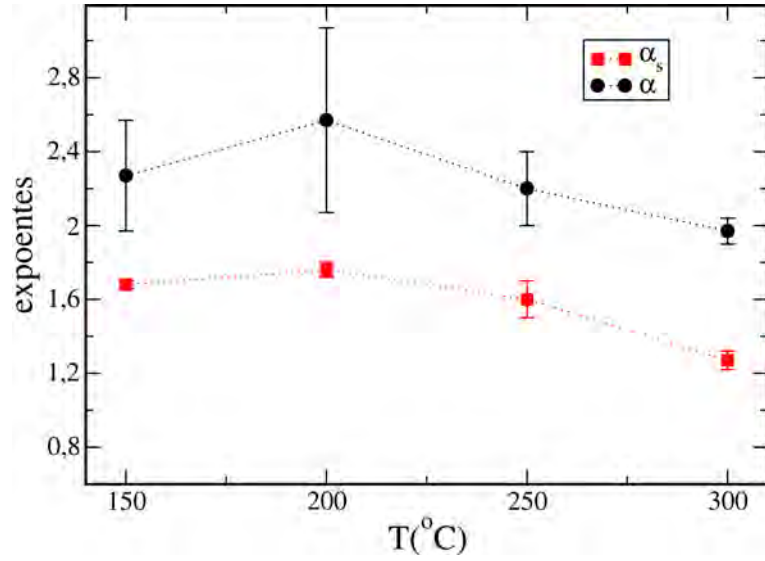


Figura 5.6: Expoente de rugosidade global α e expoente de rugosidade espectral α_s em função da temperatura.

Para verificar a validade da hipótese de escala com os expoentes obtidos, é preciso mostrar que os gráficos $S(k, t)k^{2\alpha+1}$ versus $kt^{1/z}$ colapsam em curvas universais independentemente do tempo de deposição. Os colapsos são mostrados na Figura 5.7. Vale ressaltar que a qualidade dos colapsos foram superiores a outros sistemas experimentais [58] encontrados na literatura. Geralmente as imagens de superfície são obtidas por microscopia de força atômica que fornece excelentes imagens e centenas de micrômetros de varredura, porém limita a área de varredura a alguns microns e ao máximo de 1024 pontos de resolução. Neste trabalho, foi usado um perfilômetro que fornece perfis com 4570 pontos, justificando a excelente qualidade dos colapsos mostrados. É importante mencionar que os colapsos obtidos com α_{loc} medido diretamente via rugosidade local foram nitidamente inferiores aos obtidos com $\alpha_{loc} = 1$, como mostrado na Figura 5.8.

Os resultados apresentados até o momento sugerem fortemente que o sistema segue um crescimento facetado, caracterizado pelo expoente de rugosidade local $\alpha_{loc} = 1$ e $\alpha \neq \alpha_s$ com valores maiores que 1 para todas as temperaturas estudadas. Existe, portanto, uma contradição entre os expoentes α_{loc} medidos diretamente, tanto via rugosidade local quanto via função de correlação de alturas, com o exigido com a

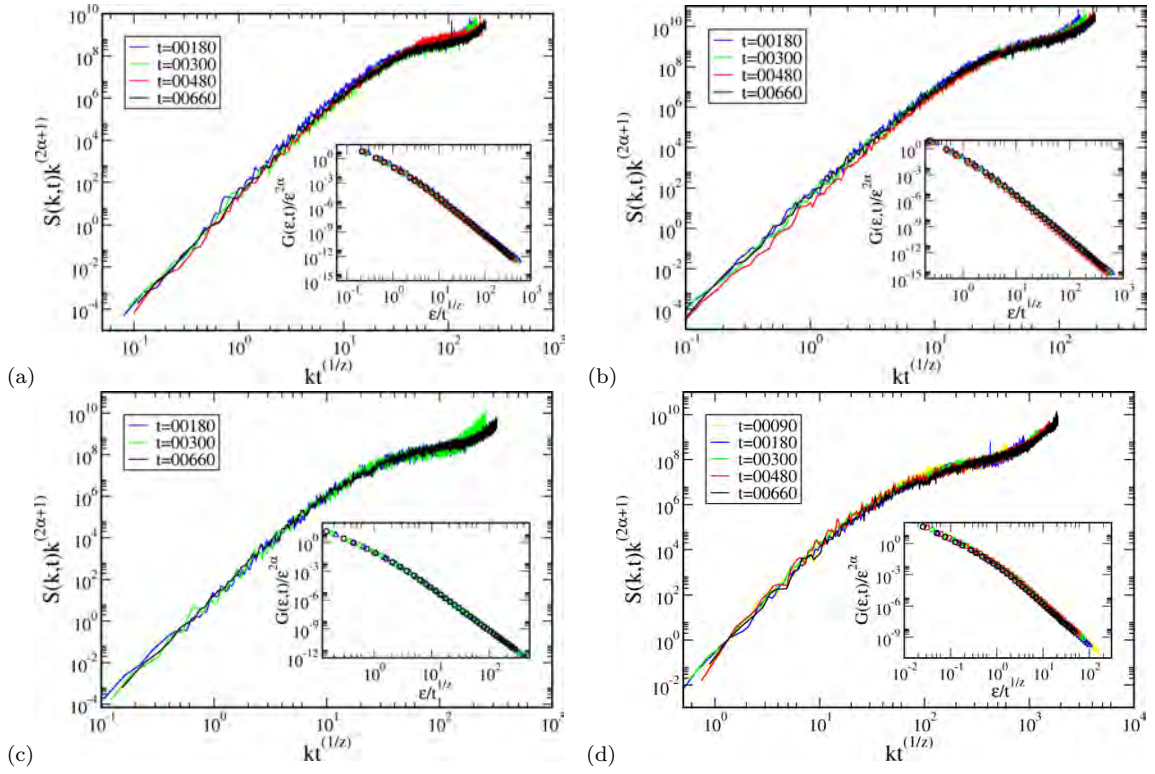


Figura 5.7: Colapso do espectro de potência para diferentes temperaturas. O destaque mostra o colapso da função correlação da diferença de alturas. (a) $T = 150^\circ\text{C}$ e os expoentes usados para o colapso são $\alpha = 2.3$ e $z = 4.2$. (b) $T = 200^\circ\text{C}$ e os expoentes usados para o colapso são $\alpha = 2.6$ e $z = 4.6$. (c) $T = 250^\circ\text{C}$ e os expoentes usados para o colapso são $\alpha = 2.2$ e $z = 3.4$. (d) $T = 300^\circ\text{C}$ e os expoentes usados para o colapso são $\alpha = 2.0$ e $z = 1.8$.

teoria de escala anômala para o espectro de potência. Para verificarmos qual das análises está correta foram feitas imagens de AFM das amostras. Uma superfície típica é mostrada na Figura 5.9 na qual confirmamos que o perfil é caracterizado por facetadas. Note que o diâmetro da sonda (ponta) do perfilômetro é da mesma ordem da varredura mostrada na Figura 5.9 o que impossibilita qualquer tentativa de resolver as facetadas diretamente. Os resultados experimentais apresentados neste trabalho, além de obedecer a teoria de escala anômala proposta por López *et al.* [17], ratificam a robustez da teoria, pois as análises de escala foram capazes de prever o crescimento facetado mesmo com o comprimento da resolução dos perfis muito maior do que o

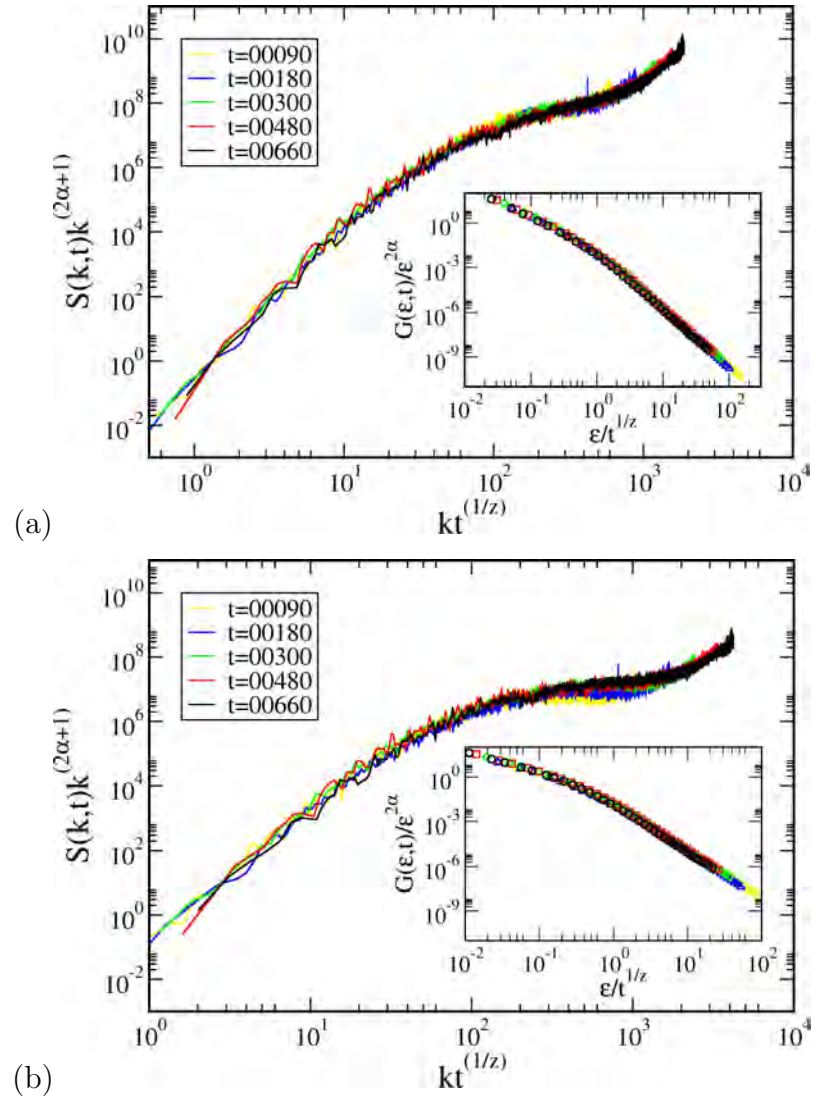


Figura 5.8: Colapsos do espectro de potência e da função correlação de alturas (inserção) usando (a) $\alpha_{loc} = 1$ e (b) $\alpha_{loc} = 0.8$ para a temperatura de $T = 150^\circ\text{C}$.

comprimento característicos das facetas.

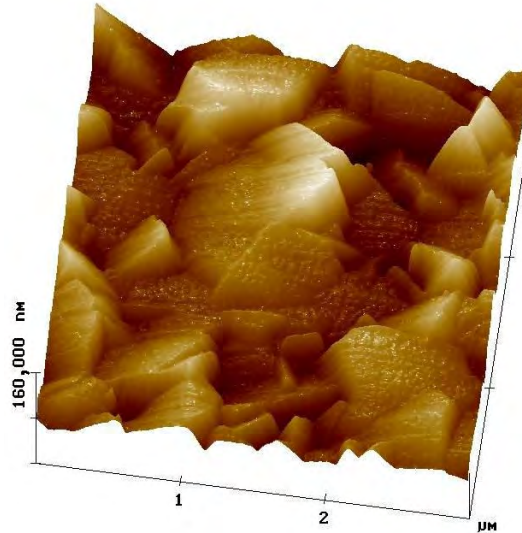


Figura 5.9: Imagem de AFM do CdTe.

Argumentos teóricos propõem que simetrias e leis de conservação restringem a emergência de rugosidade anômala a processos controlados por efeitos não-locais tais como efeitos de desordem congelada. Substratos amorfos introduzem um fator de aleatoriedade na energia de ativação térmica. Elsholz *et al.* [57] fizeram simulações de Monte Carlo adicionando uma perturbação na forma de ruído branco na energia de ligação da superfície e seus resultados mostram que a dinâmica de crescimento é fortemente dependente da desordem imposta pelo substrato. Outros modelos de crescimento em meios desordenados [59, 19] mostram que suas propriedades de escalas são não-triviais e que diferentes comportamentos de escala podem ser observados ao variar a intensidade da desordem. Apoiado por esses resultados computacionais, nós propomos que o comportamento de escala anômalo observado nos experimentos foram gerados pela desordem inicial imposta pelo substrato que se perpetua durante o crescimento.

Capítulo 6

Conclusão

A dinâmica de crescimento de filmes de telureto de cádmio crescidos sobre substratos de vidro recoberto com óxido de estanho dopado com flúor (TCO) em temperaturas diferentes foi caracterizada via teoria de escala dinâmica. Os resultados mostram que a dinâmica de crescimento de CdTe sobre vidro apresenta rugosidade anômala, caracterizada por um expoente de rugosidade global α diferente do expoente de rugosidade local α_{loc} , e que a temperatura é um importante parâmetro que controla tanto a rugosidade da interface quanto os expoentes de escala.

Os expoentes β , κ , α_s e α_{loc} foram medidos diretamente da espessura global, inclinações locais, espectro de potência e espessura local da interface, respectivamente. Enquanto que os expoentes α e z foram medidos indiretamente. Os valores encontrados para alguns desses expoentes contradizem os resultados publicados em trabalhos anteriores, porém os estudos realizados neste trabalho possibilitaram maior confiabilidade nos resultados finais o que pode ser verificado inclusive pelo colapso das curvas do espectro de potência. Esses resultados nos remetem a valores diferentes para os expoentes em função da temperatura, que, de um modo geral, observamos um regime em que os expoentes α e α_s são maiores do que 1. Ao considerar $\alpha_s > 1$ na teoria de escala dinâmica formulada no espaço de Fourier exige $\alpha_{loc} = 1$ e juntamente com o fato que $\alpha \neq \alpha_s$ esta teoria prediz a presença de interfaces facetadas. Imagens de AFM de CdTe sobre vidro obtidas posteriormente comprovam esta análise. É importante

notar que os valores medidos (0,7-0,8) para α_{loc} via espessura local da interface e correlações da diferença de alturas são inferiores ao predito pela teoria em questão. Isso reflete a baixa resolução nas medidas com perfilômetro em comprimentos de escala pequenos e reforça a robustez da teoria na análise dos dados.

A desordem inicial imposta pelo substrato rugoso é apontada neste trabalho como a origem de efeitos não-locais, os quais atuam no crescimento gerando rugosidade anômala. As perspectivas para novos trabalhos consistem em novos experimentos e simulações computacionais para elucidar a influência do substrato rugoso na dinâmica de crescimento. As propostas são investigar o crescimento de CdTe sobre substrato cristalino de Si(100) e simulações de Monte Carlo adicionando termos perturbativos na energia de ligação da superfície.

Referências Bibliográficas

- [1] M.A. Herman and H. Sitter. *Molecular Beam Epitaxy - Fundamentals and Current Status*. Berlin: Springer, 1996.
- [2] M.A. Herman, W. Richter, and H. Sitter. *Epitaxy - Physical Principles and Technical Implementation*. Berlin: Springer, 2003.
- [3] J.R. Arthur. *Surface Science*, 500:189, 2002.
- [4] X. Wu. *Solar Energy*, 77:803, 2004.
- [5] A. Morales-Acevedo. *Solar Energy*, 80:675, 2006.
- [6] A. Lopez-Otero. *Thin Solid Films*, 49:3, 1978.
- [7] S. O. Ferreira, E.C. Paiva, G.N. Fontes, and B.R.A. Neves. *J. Appl. Phys.*, 93:1195, 2003.
- [8] H.-N. Yang, Y.-P. Zhao, G.-C. Wang, and T.-M. Lu. *Phys. Rev. Lett.*, 76:3774, 1996.
- [9] A.-L. Barabási and H.E. Stanley. *Fractal Concepts in Surface Growth*. Cambridge: Cambridge University Press, 1995.
- [10] P. Meakin. *Fractals, scaling and growth far from equilibrium*. Cambridge: Cambridge University Press, 1998.
- [11] F. F. Leal, S. O. Ferreira, I. L. Menezes-Sobrinho, and T. E. Faria. *J. Phys.: Condens. Matter*, 17:27, 2005.

- [12] S. O. Ferreira, I. R. B. Ribeiro, I. L. Menezes-Sobrinho, and S. C. Ferreira Jr. *Appl. Phys. Lett.*, 88:244102, 2006.
- [13] A. S. Mata, S. C. Ferreira Jr., I. R. B. Ribeiro, and S. O. Ferreira. *Phys. Rev. B*, 78:115305, 2008.
- [14] J. M. López, M. A. Rodríguez, and R. Cuerno. *Phys. Rev. E*, 56:3993, 1997.
- [15] M. C. Lafouresse, P. J. Heard, and W. Schwarzacher. *Phys. Rev. Lett.*, 98:236101, 2007.
- [16] P. Córdoba-Torres, T. J. Mesquita, I. N. Bastos, and R. P. Nogueira. *Phys. Rev. Lett.*, 102:055504, 2009.
- [17] J. J. Ramasco, J. M. López, and M. A. Rodríguez. *Phys. Rev. Lett.*, 84:2199, 2000.
- [18] J. M. López, M. A. Rodríguez, and R. Cuerno. *Physica A*, 246:329, 1997.
- [19] I. G. Szendro, J.M. López, and M.A. Rodríguez. *Phys. Rev. E*, 76:011603, 2007.
- [20] J. M. López, M. Castro, and R. Gallego. *Phys. Rev. Lett.*, 94:166103, 2005.
- [21] J. M. López. *Phys. Rev. Lett.*, 83:4594, 1999.
- [22] M. Castro, R. Cuerno, A. Sánchez, and F. Domínguez-Adame. *Phys. Rev. E*, 57:2491, 1998.
- [23] S. Huo and W. Schwarzacher. *Phys. Rev. Lett.*, 86:256, 2001.
- [24] N.-N. Pang and W.-J. Tzeng. *Phys. Rev. E*, 70:036115, 2004.
- [25] S. Yim and T. S. Jones. *Phys. Rev. B*, 73:161305, 2006.
- [26] C. Kittel. *Introduction to Solid State Physics*. EUA: John Wiley & Sons, 2005.
- [27] L. Royer. *Bull. Soc. Franc. Min*, 51:7, 1928.
- [28] L. Royer. *Bull. Soc. Franc. Min*, 77:1004, 1954.

- [29] J.R. Arthur and J.J. LePore. *J. Vac. Sci. Technol.*, 6:545, 1969.
- [30] A.Y. Cho. *J. Vac. Sci. Technol.*, 8:S31, 1971.
- [31] S.C. Jackson, B.N. Baron, R.E. Rocheleau, and T.W.F. Russell. *J. Vac. Sci. Technol. A*, 3:1916, 1985.
- [32] J.-L. Vassent, Alain Marty, Bruno Gilles, and Christian Chatillon. *Vaccum*, 64:65, 2002.
- [33] C. Heyn and S. Cunis. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 23:2014, 2005.
- [34] R.A. Stempniak. A ciência e a tecnologia do vácuo. Technical report, Sociedade Brasileira de Vácuo, 2002.
- [35] A.Y. Cho. *J. Appl. Phys.*, 41:782, 1970.
- [36] V.R. Coluci. Simulação de crescimento epitaxial e formação de interfaces por método monte carlo. Master's thesis, Universidade Estadual de Campinas, 2000.
- [37] T. Michely and J. Krug. *Islands, Mounds and Atoms - Patterns and Processes in Crystal Growth Far from Equilibrium*. Berlin: Springer, 2004.
- [38] G. Ehrlich and F.G. Hudda. *J. Chem. Phys.*, 44:1039, 1966.
- [39] R.L. Schwoebel and E.J. Shipsey. *J. Appl. Phys.*, 37:3682, 1966.
- [40] B.B. Mandelbrot. *The Fractal Geometry of Nature*. New York: W. H. Freeman, 1983.
- [41] A. Brú, J.M. Pastor, I. Fernaund, I. Brú, and S. Melle. *Phys. Rev. Lett.*, 81:4008, 1998.
- [42] M.L. Martins, S. Ferreira, and M.J. Vilela. *Phys. of Life. Rev.*, 7:128, 2007.
- [43] K. Sneppen. *Phys. Rev. Lett.*, 69:3539, 1992.
- [44] S.R.A. Salinas. *Introdução à Física Estatística*. São Paulo: EDUSP, 1999.

- [45] A. Hankey and H.E. Stanley. *Phys. Rev. B*, 6:3515, 1972.
- [46] M. Henkel, H. Hinrichsen, and S. Lübeck. *Non-Equilibrium Phase Transitions - Volume I: Absorbing Phase Transitions*. Bristol: Springer, 2008.
- [47] F. Family and T. Vicsek. *J. Phys. A*, 18:L75, 1985.
- [48] S.F. Edwards and D.R. Wilkinson. *Proc. R. Soc.*, 381:17, 1982.
- [49] M. Kardar, G. Parisi, and Y. Zhang. *Phys. Rev. Lett.*, 56:889, 1986.
- [50] K.G. Wilson and J.Kogut. *Phys. Rep.*, 12:75, 1974.
- [51] W.W. Mullins. *J. Appl. Phys.*, 28:333, 1957.
- [52] P. Córdoba-Torres, I. N. Bastos, and R. P. Nogueira. *Phys. Rev. E*, 77:031602, 2008.
- [53] F. Family. *J. Phys. A*, 19:L441, 1986.
- [54] J.M. Kim and J.M. Kosterlitz. *Phys. Rev. Lett.*, 62:2289, 1989.
- [55] M. Makeev, R. Cuerno, and A.-L. Barabási. *Nucl. Inst. and Meth. B*, 197:185, 2002.
- [56] H.-N. Yang, Y.-P. Zhao, G.-C. Wang, and T.-M. Lu. *Phys. Rev. Lett.*, 76:3774, 1996.
- [57] F. Elsholz and E. Schöll. *Appl. Phys. Lett.*, 84:4167, 2004.
- [58] F. Elsholz, E. Shöll, C. Scharfenorth, G. Seewald, H.J. Eichler, and A. Rosenfeld. *J. Appl. Phys.*, 98:103516, 2005.
- [59] T. Laurila, M. Pradas A. Hernández-Machado, and T. Ala-Nissila. *Phys. Rev. E*, 78:031603, 2000.