

六方小面相螺旋在各向异性、表面吸附、界面动力学作用下生长的相场

董祥雷 邢辉 陈长乐 沙莎 王建元 金克新

Phase-field modeling of facet hexagonal spirals with anisotropy, deposition, and kinetic effects

Dong Xiang-Lei Xing Hui Chen Chang-Le Sha Sha Wang Jian-Yuan Jin Ke-Xin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 020701 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.020701

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.020701>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I2>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

一种基于 BLT 方程的孔缝箱体屏蔽效能计算方法

[A BLT equation-based approach for calculating the shielding effectiveness of enclosures with apertures](#)

物理学报.2015, 64(1): 010701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.010701>

一种考虑小孔尺寸效应的孔阵等效建模方法

[An equivalent approach to modeling aperture array with considering size effect of apertures](#)

物理学报.2014, 63(12): 120701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.120701>

球形压头与单晶铝材料纳米接触过程的多尺度分析

[Multi-scale analysis of nanoscale contact process between spherical indenter and single crystal aluminium](#)

物理学报.2013, 62(18): 180702 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.180702>

石墨烯等二维原子晶体薄片样品的光学衬度计算及其层数表征

[The numerical-aperture-dependent optical contrast and thickness determination of ultrathin flakes of two-dimensional atomic crystals: A case of graphene multilayers](#)

物理学报.2013, 62(11): 110702 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.110702>

温度梯度对晶粒生长行为影响的相场模拟

[Effect of temperature gradient on grain growth behavior from phase field simulations](#)

物理学报.2011, 60(10): 100701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.60.100701>

# 六方小面相螺旋在各向异性、表面吸附、界面动力学作用下生长的相场\*

董祥雷 邢辉 陈长乐<sup>†</sup> 沙莎 王建元 金克新

(西北工业大学理学院, 陕西省凝聚态结构与性质重点实验室, 西安 710129)

(2015年9月7日收到; 2015年12月3日收到修改稿)

利用定量相场模型研究了强各向异性、表面吸附率以及界面动力学作用条件下六方 GaN 螺旋结构的表面形貌与生长机理. 通过引入小面相各向异性的相场修正方程, 研究了不同各向异性的稳态螺旋形貌, 发现各向异性通过改变台阶尖端的曲率作用影响螺旋生长. 弱各向异性下稳态螺距及界面动力学特征相对稳定, 各向异性较强时尖端的过饱和度随着各向异性的增强而增大, 并使得界面平衡态向着有利于螺旋台阶推进的方向移动. 研究了表面吸附率对小面相螺旋生长的作用机理, 发现吸附率的增加导致了稳态螺旋间距的降低, 通过分析螺旋间距随台阶宽度的变化趋势, 发现增强的表面吸附和各向异性强度降低了螺旋间距的收敛性, 并且具体分析了收敛性误差; 通过探讨界面动力学作用条件下螺旋形貌特征以及螺旋间距变化趋势, 发现界面动力学系数通过改变稳态螺旋间距与特征指数因子调控螺旋生长的动力学机理, 与各向同性相比小面相螺旋生长表现出较低的界面动力学系数依赖性.

**关键词:** 数值模型与模拟, 表面形貌, 薄膜生长与沉积, 动力学作用**PACS:** 07.05.Tp, 81.65.Cf, 81.15.-z, 68.43.Mn**DOI:** 10.7498/aps.65.020701

## 1 引言

螺旋结构是一种普遍存在于晶体表面的生长形貌<sup>[1]</sup>. 螺旋生长模式理论认为, 晶体结构可以由其表面缺陷导致的螺位错产生并控制, 尤其是针对外延薄膜生长的表面, 螺位错产生的局域台阶将沿着位错核缠绕生长直至铺满一层. 通过对螺旋生长过程的定量研究, 不仅能够直接调控薄膜形貌和表面生长趋势, 对成膜以后材料的光学、电学、机械性能等也将产生至关重要的影响<sup>[2,3]</sup>. 通过研究不同晶体生长过程中螺旋的形貌及形成机理, 能够很好地诠释缺陷调制生长动力学、微观形貌及其宏观物性的一般规律<sup>[4]</sup>. 如螺旋生长模式能够有效地调控

GaN 基半导体器件的输运特性等.

螺旋生长的理论机理最初由 Burton, Cabrera 和 Frank (BFC)<sup>[5]</sup> 提出. BFC 理论认为, 螺旋表面形貌由吸附原子的过饱和度与固-气平衡界面的物化参量控制; 螺旋台阶的径向推进速度  $V$  取决于其局域的曲率半径  $r$ :  $V(r) = V_{\infty}(1 - r_c/r)$ . 基于该理论, 国内外的科研工作者开展了大量的理论推导与实验研究<sup>[6-10]</sup> 解释螺旋生长过程中的热力学问题及生长动力学的原子运动. 然而, 如何将动力学过程研究与宏观热力学形貌定量联系, 即通过微观吸附原子的运动规律及表面、界面动力学特征定量预测螺旋的整体生长形貌与形成机理, 仍然是螺旋生长研究领域亟待研究的重要课题.

\* 国家自然科学基金 (批准号: 61471301, 51172183, 51402240, 51471134)、陕西省自然科学基金 (批准号: 2015JQ5125)、西北工业大学博士论文创新基金 (批准号: CX201325)、中央高校基本科研业务费 (批准号: 3102015ZY078) 和高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 20126102110045) 资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: [chenchl@nwpu.edu.cn](mailto:chenchl@nwpu.edu.cn)

数值模拟技术作为一种新兴研究手段,可以有效地监控外延薄膜生长的动态过程. 介观尺度的模拟方法能够建立起螺旋结构形成与微观原子运动学的本征联系. 如水平集方法<sup>[1]</sup>可以较为理想地模拟螺旋的形成与相互作用,解释螺旋岛的粗化与融并机理,并预测开环以及闭环螺旋结构的生长速率;动力学蒙特卡罗模拟方法<sup>[11-15]</sup>能够较好地理解螺旋生长的微观动力学以及吸附过程,尤其适合于针对非平衡作用下的吸附原子运动过程的实时监控<sup>[14,15]</sup>. 然而,上述模拟方法均需要对不同台阶界面的具体信息进行实时追踪与求解,着重于单原子构成界面的精确解而降低了计算效率与模拟尺度,不能高效地处理较大尺度下的复杂多界面问题,因此难以定量地将模拟得到的螺旋生长动力学规律与表面生长形貌相联系. 相场法<sup>[16-20]</sup>作为模拟薄膜生长的新技术,可以针对不同薄膜材料表面螺旋结构的动力学生长过程以及表面形貌进行定量研究与模拟预测. 在相场模型中,螺旋结构的阶面与台阶分别通过不同的序参量 $\phi$ 加以区分(其中,阶面位置 $\phi$ 取整数,台阶位置 $\phi$ 取相应的分数). 通过建立关于 $\phi$ 的演化方程,可以将多边界的复杂界面运动问题转化成自由边界的问题,有效避免了界面追踪,提高了数值计算的效率. 此外,相场模拟作为一种介观尺度的模拟方法,将尖锐界面问题拓展成一定厚度的弥散界面,这使得相场法更适合处理较大尺度下生长形貌与演化问题,因此,可以有效地寻求螺旋生长的动力学机理与宏观形貌特征的内在联系.

自20世纪90年代以来,相场方法逐渐成为被广泛接受的、应用于研究复杂界面形貌演化的数值模拟方法<sup>[21-30]</sup>. Beckermann<sup>[21]</sup>以体积平均法为基础,利用Gibbs-Thomson关系中界面速度的表达式直接获得了热力学一致的相场演化方程,并且耦合外场方程,从而形成一套完整的相场模型; Karma和Rappel<sup>[22,23]</sup>提出了薄界面渐进性分析法,确定了晶体生长参数与相场模型的定量关系,从而降低了模拟的计算量和计算时间. Karma与Rappel(KR)的定量相场模型的提出,不仅提高了计算效率,也使相场模型定量符合Gibbs-Thomson关系. 以该模型为基础,研究者在金属凝固领域开展了卓有成效的工作,如文献<sup>[23]</sup>定量计算了小过冷条件下的纯金属三维自由枝晶生长; Echebarria

等<sup>[24]</sup>将该模型推广至合金定向凝固中; Ramirez等<sup>[25]</sup>进一步将模型推广到二元合金凝固中; Folch与Plapp<sup>[26]</sup>利用薄界面渐进性分析的基本原理,建立了适用于两相耦合生长的定量多元相场模型; Wang等<sup>[27]</sup>研究了定向凝固中各向异性对初始形貌失稳的影响; Xing等<sup>[28,29]</sup>讨论了定向凝固中倾斜枝晶生长动力学及枝晶-对称破缺枝晶的转变机理; Duan等<sup>[30]</sup>重点研究了镁基合金在等温条件下自由枝晶的生长过程,数值模拟了收敛性,以及各向异性和过饱和度对枝晶生长特征以及稳定性的影响趋势.

相场模拟外延薄膜生长过程中螺旋的形成与机理问题已经受到国内外研究工作者的广泛关注. Karma与Plapp<sup>[31]</sup>首次提出了螺旋生长的定量相场模型,并研究了无逸出原子条件下的螺旋表面生长的一般问题. 他们的研究结果精确地预测了螺旋生长的间距随吸附率变化的一般规律,以及平衡态弛豫时间依赖螺位错密度的变化趋势. Yu等<sup>[32]</sup>通过引入应变项以及不同程度的表面吸附研究了Si(100)表面双螺旋的竞争机理以及台阶动力学过程,该研究成果有望揭示应变机理下螺旋生长过程中特殊的台阶运动规律. Redinger等<sup>[33]</sup>通过对比位错诱导的螺旋结构以及二维形核诱导的多层“蛋糕结构”,研究了形核动力学与位错动力学对Pt(111)表面生长与形貌选择的影响机理. 结果表明,动力学失稳对薄膜生长的形貌控制起到基础性的调控作用. 针对小面相生长的Pt(111)表面,界面能各向异性将对螺旋生长的形貌选择以及生长速率产生较为明显的作用,尤其是针对六方hcp系晶体结构而言,界面能各向异性较为复杂,晶体生长形貌与动力学机理也呈现出复杂与多变的趋势. 以GaN半导体薄膜为例,不同极性的纤锌矿结构表现为不同的界面能与各向异性,其表面光电特性受到螺位错影响也会产生较为明显的差异. 因此通过研究各向异性对螺旋生长的形貌与形成机理的影响,可实现对薄膜材料宏观物性的间接调制. 本文以GaN基的六方小面相螺旋生长为例,利用定量相场模型系统地研究了各向异性对螺旋生长过程、形貌以及生长动力学机理的影响规律,并且深入探讨了界面曲率、外界吸附、界面动力学等与界面各向异性耦合,对螺旋生长过程、螺旋生长收敛性的作用机理.

## 2 模型描述与参数选择

### 2.1 相场模型

为产生螺旋结构, 初始螺位错由空间相关序参量  $\phi_s$  独立地描述; 在薄膜外延生长中, 通过在  $x-y$  平面上设置一致的相场序参量  $\phi(x, y, t)$  来区分螺旋表面的台阶与阶面. 其中,  $\phi_s, \phi_s + 1, \phi_s + 2, \dots, \phi_s + n$  分别代表基底, 第一层, 第二层,  $\dots$ , 第  $n$  层. 各层之间的台阶由相邻层序参量之间的取值表示. 螺旋生长的控制方程为:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \frac{1}{\tau_\phi} \left\{ W^2 \nabla^2 \phi - 2 \sin[2\pi(\phi - \phi_s)] - \lambda u \{ 2 \cos[2\pi(\phi - \phi_s)] - 2 \} \right\}, \quad (1)$$

$$\frac{\partial u}{\partial t} = D \nabla^2 u - \frac{\partial \phi}{\partial t} - \frac{u}{\tau_s} + F. \quad (2)$$

其中, (1) 式为相场演化控制方程, (2) 式为原子密度场(溶质场)演化控制方程.  $\tau_\phi$  为描述台阶生长中吸附原子动力学附着(attachment)至台阶上的特征时间;  $W$  定义为台阶的特征宽度, 用来表征相场模拟中的弥散界面厚度;  $\lambda$  为联系相场与密度场的耦合因子;  $u = \Omega(c - c_{\text{eq}})$  表示为无量纲化的吸附原子密度, 其中  $c$  为单位面积基底上吸附原子的数目,  $\Omega$  为原胞面积,  $c_{\text{eq}}$  为台阶上的平衡原子密度;  $D$  为表面扩散系数;  $\tau_s$  为表征吸附原子逸出基底或薄膜表面的特征时间;  $F$  为单位时间内吸附到基底或薄膜表面的原子层数, 即表面吸附率.

为研究六方螺旋结构, 通过梯度能项  $\eta(\theta) = 1 + \varepsilon \cos(6\theta)$  引入六对称各向异性, (1) 式可以被拓展为

$$\eta^2 \frac{\partial \phi}{\partial t'} = - \frac{\partial}{\partial x'} \left( \eta \eta' \frac{\partial \phi}{\partial y'} \right) + \frac{\partial}{\partial y'} \left( \eta \eta' \frac{\partial \phi}{\partial x'} \right) + \nabla'^2 (\eta^2 \phi) - 2 \sin[2\pi(\phi - \phi_s)] - \lambda u \{ 2 \cos[2\pi(\phi - \phi_s)] - 2 \}. \quad (3)$$

根据渐进性分析, 原子密度在薄界面近似下的稳态解由下式表述:

$$u = d_0 \kappa + \beta V. \quad (4)$$

这里第一项为曲率控制作用项,  $d_0 = \Omega^2 c_{\text{eq}} \sigma / (k_B T)$  是与模拟尺度相关的台阶特征长度, 其中,  $\sigma$  定义为台阶硬度,  $k_B$  为玻尔兹曼常数,  $T$  为基底温度. 第二项为界面动力学控制作用项,  $\beta = a_1 (\tau_\phi / (\lambda W) - a_2 W / D)$  定义为与原子附着运

动相关的动力学系数. 当  $\beta$  趋向于 0 时, 表明原子附着运动在瞬间可以完成, 台阶界面处于局域平衡态, 界面上的稳态原子分布仅仅由曲率项决定:  $u = d_0 \kappa$ . 这种局域平衡的界面处理方式可以有效地规避界面上由于原子运动产生的非平衡动力学问题, 使得相场模拟能够对大尺度下的螺旋生长问题进行定量描述. 在局域平衡态下, 模拟特征参数由下式决定:

$$d_0 = a_1 W / \lambda, \quad \tau_\phi = a_2 \lambda W^3 / D, \quad (5)$$

其中,  $a_1 = 0.359174$ ,  $a_2 = 0.510442$ .

### 2.2 小面相修正

对于小面相生长而言, 较大的各向异性系数  $\varepsilon$  将会使数值模拟结构产生局域的不收敛. 以四对称为例, 如果各向异性系数  $\varepsilon$  超过  $1/15$ , 在四个最优生长方向局域内, 台阶界面的原子密度将会偏离平衡的 Gibbs-Thomas 关系, 而呈现出非稳态或亚稳态的取向. 对于六对称各向异性而言, 情况更为复杂: 当  $\varepsilon$  超过  $1/35$  时, 就将会产生形貌非稳, 并且非稳态区域增加为 6 个. 迄今为止, 许多研究工作者<sup>[34-36]</sup> 对这种强各向异性导致的数值模拟非稳态进行了细致的研究, 并提出了相应的重整化模型. 其中, Eggleston 等<sup>[37]</sup> 针对四对称各向异性给出了较为完善的修正工作, 然而对于六对称而言, 强各向异性的修正结果还未得到验证. 本文沿用 Eggleston 等的模型修正方法, 将四对称的修正方程推广至六对称, 并且通过详细的收敛性分析对数值模拟结果进行分析与验证.

修正模型首先将各向异性界面的梯度能系数  $\eta(\theta)$  拓展为  $\tilde{\eta}(\theta)$ , 其中  $\tilde{\eta}(\theta)$  由一个连续的分段函数表示:

$$\tilde{\eta} = \eta(\theta), \quad \theta_m \leq |\theta| \leq \pi/6, \quad (6)$$

$$\tilde{\eta} = \eta(\theta_m) \cos \theta / \cos \theta_m, \quad |\theta| < \theta_m, \quad (7)$$

其中,  $\theta_m$  表示为产生取向非稳态的临界角, 当  $|\theta| < \theta_m$  时, 强各向异性将导致取向非稳, 因此需要 (5), (2), (4) 式对界面的各向异性进行定量修正, 其中,

$$\varepsilon(\theta_m) \sin \theta_m + \varepsilon_\theta \cos \theta_m = 0. \quad (8)$$

通过这种修正方法, 相场模型有望对强各向异性下六方小面相的螺旋生长进行定量地模拟.

### 2.3 物性参数选择

本文以简单的无极性纤锌矿 GaN(0001) 的  $(2 \times 2)$  [38] 重构表面的螺旋结构为主要研究对象, 选取的参数列于表 1.

表 1 六方 GaN(0001)- $(2 \times 2)$  重构面螺旋生长的相场模型参数选择

Table 1. Simulated parameters of spiral growth on the hexagonal GaN(0001)- $(2 \times 2)$  reconstructed surface.

材料参数	标识	具体取值
晶格常数/nm	$a$	0.321
晶胞面积/nm <sup>2</sup>	$\Omega$	0.412
表面扩散势垒/eV	$E_d$	0.7
原子振动频率/s <sup>-1</sup>	$\nu$	$10^{14}$
基底温度/K	$T$	873
各向异性强度	$\epsilon$	0—0.1
台阶毛细长度/nm	$d_0$	9.15

### 2.4 初始条件与边界条件

本文相场模拟的计算尺寸选择为  $N \times N = 128 \times 128$  的正方形网格, 网格的空间步长为  $\Delta x = 0.5$ , 时间步长为  $\Delta t = 0.00025$ ; 空间尺度特征参数  $W = 11.14d_0$ — $33.41d_0$ ,  $W$  的取值与模拟中采用的界面厚度直接相关; 时间尺度特征参数  $\tau_\phi$  由 (5) 式中的定量关系决定, 以消除动力学作用对界面可能造成的影响. 设定初始平面为包含单个螺位错的台阶面,  $\phi_s \equiv \arctan(y'/x')/(2\pi)$ , 其中  $x'$  与  $y'$  分别代表目标位置距位错中心的横向与纵向距离, 位错中心点被钉扎在网格中心的位置, 如图 1 所示.

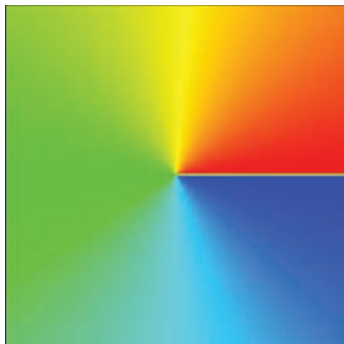


图 1 (网刊彩色) 螺旋生长初始条件的相场分布图, 其中蓝色代表  $\phi = 0$ , 红色代表  $\phi = 1$ , 随着颜色变暖相场数值从 0 到 1 过渡

Fig. 1. (color online) Illustration of the Initial phase-field distribution for spiral growth. The blue region corresponds to  $\phi = 0$  and the red region corresponds to  $\phi = 1$ . The value of  $\phi$  changes from 0 to 1 as the color gets warmer.

设置初始条件  $\phi = \phi_s$ , 表明薄膜将依附包含螺位错的基底台阶进行外延生长. 边界条件设置为 No-Flux 边界条件. 初始过饱和密度为  $u = 0$ , 即在相场模拟中, 不提供初始的过饱和和吸附原子, 吸附作用由溶质场演化方程中的表面吸附率  $F$  统一提供.

### 3 结果分析与讨论

首先给出的是无逸出原子、无各向异性的条件下, GaN 表面在较大吸附率作用下 ( $F = 0.5 \text{ ML/s}$ ,  $Fd_0^2/D = 6.68 \times 10^{-5}$ ) 的螺旋生长特征与演化形貌, 如图 2 所示.

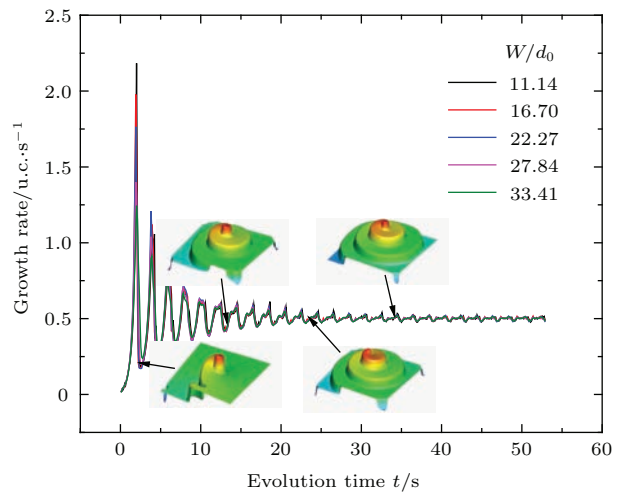


图 2 (网刊彩色) 各向同性条件下, 螺旋尖端生长速率随演化时间的变化. 吸附率为  $F = 0.5 \text{ ML/s}$ ; 内插图代表不同时间的表面生长形貌, 不同颜色的曲线代表不同的台阶宽度

Fig. 2. (color online) Growth rate as a function of the evolution time at the deposition rate of  $F = 0.5 \text{ ML/s}$  in isotropic spirals. The inset patterns correspond to the predicted morphologies for different growth stages, and lines with different colors correspond to the simulated conditions with different step widths.

薄膜外延的初始阶段, 螺位错的生长主要表现为直台阶面沿着界面垂直方向的推进. 由于台阶界面一端的位错中心位置被钉扎, 因此直台阶界面渐渐演化为围绕位错中心点环绕生长的弯曲界面, 其中位错中心生长较快, 形成螺旋尖端. 尖端附近的曲率半径决定了螺旋生长的稳定性: 初始的直台阶表现为曲率半径的无穷大, 螺位错严重偏离平衡态, 尖端生长速率较大; 随着时间的演化, 曲率半径减小, 螺旋生长逐渐稳定, 尖端生长速率明显降低; 当曲率半径达到临界半径  $r_c$  以后, 螺旋结构处于局

域平衡的稳定态, 其生长形貌的转变仅仅表现为外延层数的增加、螺旋线周期性的旋转以及螺旋结构向外的不断扩展, 尖端生长速率与其附近的曲率基本保持不变. 稳态的螺旋结构可以覆盖整体网格区域, 实际的空间尺度为  $6.5 \mu\text{m} \times 6.5 \mu\text{m}$ , 换算成位错密度约为  $2.4 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ , 就同质外延的 GaN 薄膜而言, 对应于缺陷较多的薄膜表面. 值得注意的是, 尖端生长速率曲线随时间呈现出衰减性的振荡趋势. 通过对比不同台阶宽度的螺旋生长发现, 振荡曲线并未随台阶宽度降低而削弱, 而是表现为几乎重合的形状, 这表明尖端速率的振荡行为来源于螺旋结构本身旋转导致的速率差异, 而与界面厚度导致的模拟误差无关. 此外, 尖端速率曲线的重合定性地反映了在不考虑各向异性的前提下, GaN 螺旋生长速率的相场模拟结果具有较好的收敛性.

GaN 薄膜外延生长过程中, 薄膜表面螺旋结构的构建与台阶界面的各向异性密切相关, 而界面各向异性会根据基底表面结构、极性原子、原子富集程度的不同表现出较为明显的差异. 为研究外界因素对 GaN 螺旋生长的定量控制作用, 界面能各向异性是极为关键的因素. 通过施加不同强度的各向异性, 得到稳定的 GaN 螺旋生长形貌, 如图 3 所示.

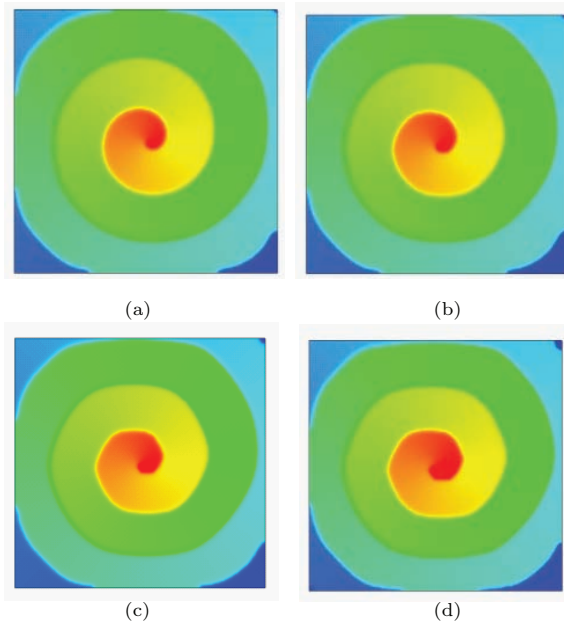


图 3 (网刊彩色) 不同各向异性条件下稳定螺旋结构的生长形貌 (俯视图) (a)  $\varepsilon = 0$ ; (b)  $\varepsilon = 0.02$ ; (c)  $\varepsilon = 0.06$ ; (d)  $\varepsilon = 0.1$

Fig. 3. (color online) Growth patterns upon the different effects of anisotropy: predicted morphologies of the steady-state spirals, for (a)  $\varepsilon = 0$ , (b)  $\varepsilon = 0.02$ , (c)  $\varepsilon = 0.06$ , (d)  $\varepsilon = 0.1$ , respectively.

随着各向异性的增强, 稳态螺旋形貌一致性地从光滑螺旋线向着取向明显的六角结构过渡. 具体而言, 对于弱各向异性, 从  $\varepsilon = 0$  到  $\varepsilon = 0.02$ , 尖端局部的曲率半径近乎不变; 而强各向异性条件下, 从  $\varepsilon = 0.06$  到  $\varepsilon = 0.1$ , 曲率半径呈现出增加的趋势, 表明界面能各向异性导致了生长模式的差异, 从而使得螺旋结构表现出不同的生长特性. 当螺旋处于非小面生长 ( $\varepsilon = 0.02$ ) 时, 较弱的各向异性能仅仅改变界面形状与择优取向, 不足以产生界面动力学作用, 螺旋生长始终保持局域平衡态, 台阶推进与生长速率仅与台阶上下的原子密度相关, 而基本不会受到各向异性的择优取向影响; 而当螺旋处于小面生长 ( $\varepsilon = 0.06, \varepsilon = 0.1$ ) 时, 虽然形成螺旋结构仍然需要消耗一定的吸附原子, 但是强各向异性与界面耦合, 诱导了界面动力学效应, 使得螺旋生长的局域平衡被打破, 螺旋结构倾向于朝着新的准平衡态演化, 随着各向异性强度的增加, 螺旋表现出了较为明显的台阶推进趋势.

为研究小面生长中各向异性诱导的界面动力学效应, 图 4(a) 给出了不同各向异性下, 择优生长方向的螺旋结构的相场与密度场分布. 从图中可以看出, 相场变量  $\phi$  与局域原子密度  $u$  随  $\varepsilon$  的增加表现出与生长形貌一致的变化趋势: 非小面生长时,  $\phi$  和  $u$  基本与各向同性螺旋重合, 表明非小面的各向异性对螺旋的界面生长速率以及局域平衡态影响较小; 小面向生长时,  $\phi$  随  $\varepsilon$  的增加而显著地沿生长方向推进,  $u$  随  $\varepsilon$  的增加而明显降低, 这一趋势表明, 小面向各向异性诱导界面产生了较大的台阶推进速率, 从而使螺旋结构向着有利于自身生长的方向演化. 这种界面诱导作用与界面曲率效应相关. 在小面向生长的前提下, 各向异性首先产生了曲率的再分布, 在择优生长方向上, 较强的各向异性表现为尖端曲率的增加, 根据 Gibbs-Thomas 关系, 局域平衡的台阶原子密度为  $u = d_0 \kappa$ , 曲率项作用通过降低平衡界面的原子密度而改变界面的局域平衡态, 因此在相同的吸附率条件下, 各向异性性能的增强表现为过饱和度的相对增加, 从而使得螺旋生长更倾向于沿着有利于台阶推进的方向进行, 最终导致了  $\phi$  与  $u$  随着  $\varepsilon$  的显著变化. 类似的趋势可以通过进一步考察各向异性对螺旋结构特征生长参数的作用来验证, 如图 4(b) 所示. 其中,  $l$  为距螺旋中心最近的两个连续台阶之间的间隔距离, 即螺旋间距;  $h$  为螺旋生长过程中已沉积的平均原

子层数. 当  $\varepsilon < 0.04$  时,  $l$  始终保持在一个相对稳定的数值, 而  $h$  随  $\varepsilon$  已经表现为相对明显的增加趋势. 稳态下的螺旋间距反映了螺旋结构的界面平衡态以及生长动力学特征, 当  $l$  保持不变时, 说明螺旋界面的动力学平衡态未被打破, 此时各向异性主要通过提高吸附原子沉积来产生择优取向. 当  $\varepsilon > 0.04$  时,  $l$  与  $h$  分别表现为较为明显的降低与增加的趋势. 螺旋间距的降低表明各向异性推动螺旋尖端界面的平衡态向着有利于生长的方向转变而  $h$  的稳定增加则反映了各向异性对于螺旋生长中原子沉积的促进作用. 各向异性诱导界面动力学作用是一个随着各向异性强度逐渐累积的过程: 在非小面相乃至小面相生长中, 较弱的各向异性均不足以影响界面平衡态, 螺旋的稳态间距以及界面动力学特征保持相对稳定状态; 随着  $\varepsilon$  的逐渐增加, 各向异性能开始作用于界面曲率, 由于择优取向的尖端的过饱和度增强而使得界面局域失稳, 界面平衡态向着有利于螺旋生长的方向移动.

综上所述, 小面相生长过程中, 由于各向异性与曲率项的耦合作用使得螺旋界面偏离原有的局域平衡态, 因此对于定量相场模拟而言, 平衡态的改变有可能对模拟结果的收敛性产生影响. 为研究各向异性作用下螺旋生长相场模拟的收敛性, 图 5 给出了小面相各向异性 (不失一般性, 小面相生长均选取  $\varepsilon = 0.1$  作为研究参考) 与各向同性条件下稳态的螺旋间距随着台阶宽度 ( $W/d_0$ ) 的变化曲线. 由图 5 可以看到, 不同界面厚度下小面向各向异性的螺旋间距均小于各向同性的情形, 进一步表明了强各向异性对螺旋生长以及台阶界面的推动作用. 随着界面厚度的降低, 螺旋间距均呈现出非线性减小的趋势并且最终收敛至尖锐界面的理论解. 为对收敛性曲线进行定量研究, 现通过函数  $l/d_0 = l^0 + \eta(W/d_0)^\alpha$  分别对小面向以及各向同性的螺旋间距进行拟合, 以评估螺旋间距随着界面厚度变化的非线性程度. 其中,  $l^0$  为无量纲化螺旋间距在尖锐界面下的收敛解, 可以近似地评估为螺旋间距的理论解,  $\alpha$  为平均收敛阶数,  $\eta$  描述了收敛阶为  $\alpha$  所占有的权重因子. 由于各向异性能的作用改变了螺旋界面的局域平衡态, 导致产生了界面平衡原子密度的差异. 相较于各向同性的螺旋生长而言, 小面相生长的界面动力学更倾向于推进台阶扩散以及螺旋的进一步生长, 因此小面相螺旋间距的尖锐界面解  $l^0$  将显著降低, 这与小面向稳定螺旋的

尖端曲率增加是一致的. 对于收敛性而言, 各向同性的螺旋生长表现出较大的收敛阶  $\alpha$  以及较小的权重因子  $\eta$ , 这表明在没有各向异性的条件下, 相场模拟结果随着界面厚度的降低能够更一致地收敛于尖锐界面解. 然而, 对于小面相生长, 较强的各向异性导致界面曲率效应的显著增强以及界面过饱和度的增加, 这使得螺旋生长在达到局域平衡态之前, 表现为更快速的界面推进, 随着界面动力学作用的增强, 需要更为细致的空间与时间尺度才能够对小面向生长中增强的界面曲率及其动力学生长现象进行定量描述. 在界面厚度相同的前提下, 小面相模拟的收敛性将会明显弱于各向同性的螺旋模拟, 因此收敛性曲线上表现出较小的收敛阶  $\alpha$  以及较大的权重因子  $\eta$ .

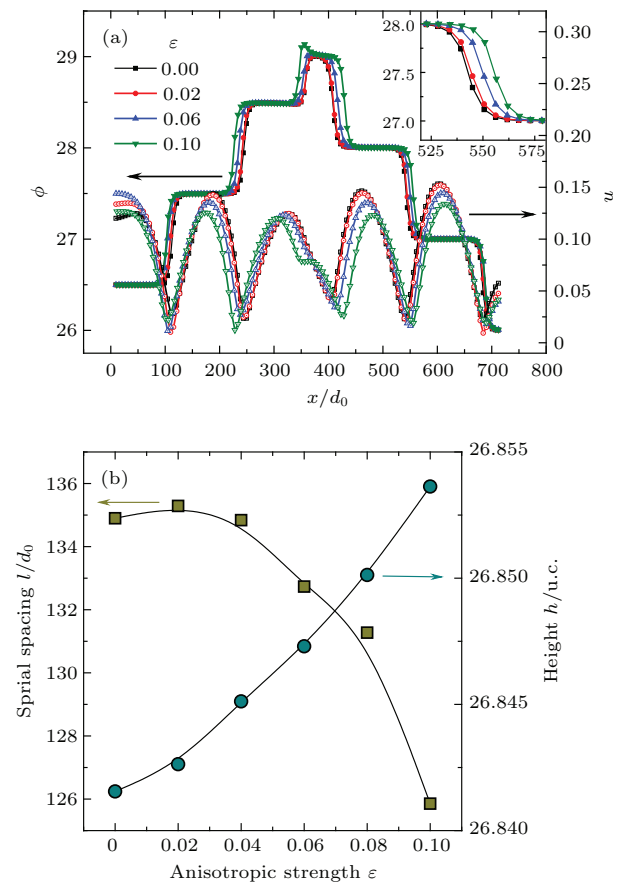


图 4 (网刊彩色) 不同各向异性对螺旋生长特征的影响作用 (a) 各向异性对相场参量  $\phi$  以及局域原子密度  $u$  的空间分布的影响; (b) 各向异性对稳态螺旋间距以及平衡沉积层数的作用

Fig. 4. (color online) Growth characteristics upon the different effects of anisotropy: (a) Profiles of the spatial distributions of phase-field variable  $\phi$  and the density  $u$  for the varied anisotropic effects; (b) the spacing of spirals and the average height of layers depending on the anisotropic strength  $\varepsilon$ .

值得注意的是,除了曲率效应导致的界面动力学推动,各向异性还存在着其他非本征的动力学因素.对于小面向生长的重整化相场模型,由于没有经过详细的渐进性分析,这种重整化方法极有可能会对界面的Gibbs-Thomas关系产生影响,产生额外的非本征界面动力学效应,这也是导致小面相生长中模型收敛性降低的另一种因素.由于本文着重于各向异性对界面本身的作用机理,因此将不会对这种非本征的界面动力学效应进行更为定量的分析与验证.

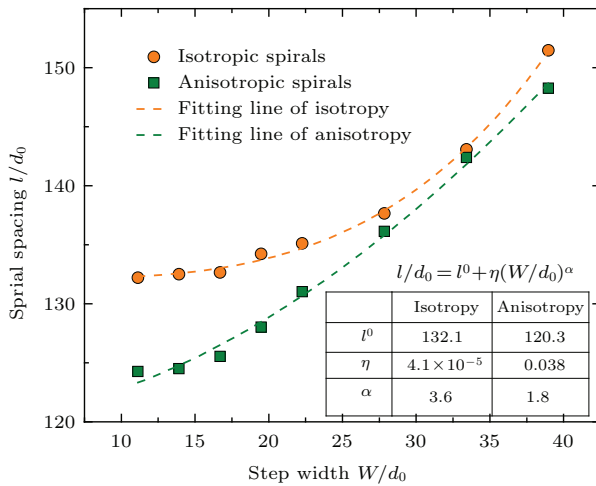


图5 (网刊彩色) 各向同性以及小面相 ( $\epsilon = 0.1$ ) 螺旋生长中稳态螺旋间距随台阶宽度  $W/d_0$  的变化  
 Fig. 5. (color online) Convergence studies of spiral spacing  $l$  versus the step width  $W/d_0$  for both isotropic and anisotropic ( $\epsilon = 0.1$ ) spirals.

一般而言,螺旋生长动力学的基本特征可以由其稳态螺旋间距  $l$  随表面吸附率  $F$  的变化规律描述 [31,33]. 因此,表面吸附率对于研究小面向螺旋生长机理以及各向异性对螺旋台阶界面的作用极为关键.图6(a)给出了不同吸附率作用下,各向同性螺旋生长模拟的收敛性.可以看到,螺旋间距的尖锐界面解  $l_0$  和收敛阶  $\alpha$  随表面吸附率的增加而降低,权重因子  $\eta$  随着吸附率的增加而增大,表明吸附率的作用改变了界面局域平衡态,使得稳态的螺旋生长向着有利于促进台阶界面推进的方向进行,因此降低了模拟结果的收敛性,这与各向异性导致的曲率效应是一致的.除此以外,吸附率与各向异性耦合,通过改变界面前沿的过饱和度与界面生长速度对尖端的曲率产生作用,同时调制了螺旋的表面形貌以及模拟结果的收敛性.如图6(b)所示,较大的表面吸附使得各向异性导致的曲率作用更加明显,进一步降低了螺旋间距的收敛性.

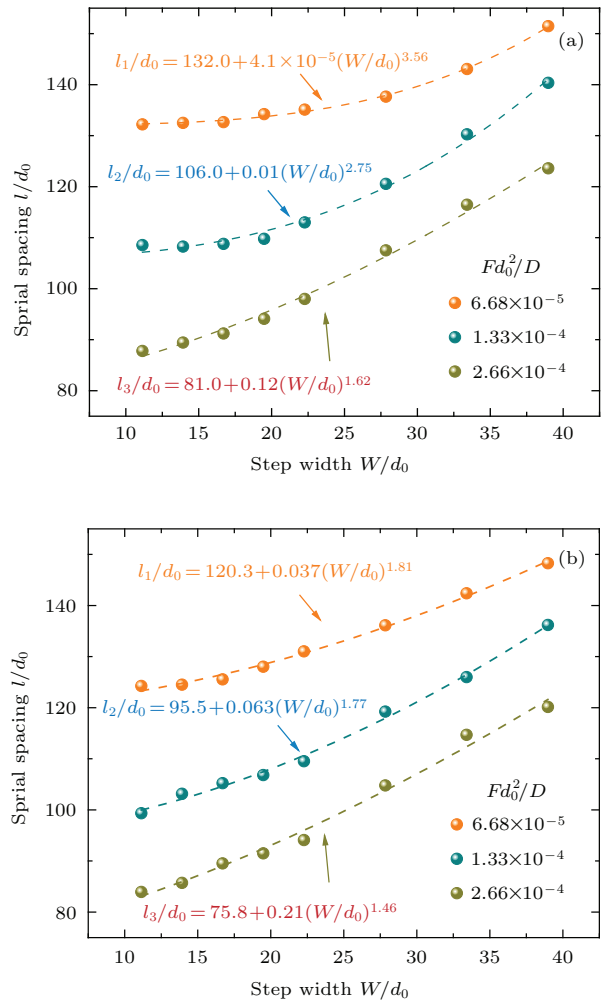


图6 (网刊彩色) 不同表面吸附率条件下稳态螺旋间距随台阶宽度  $W/d_0$  的变化 (a) 各向同性; (b) 小面相 ( $\epsilon = 0.1$ )  
 Fig. 6. (color online) Convergence studies of spiral spacing  $l$  versus the step width  $W/d_0$  with the different rates of deposition in both (a) isotropic and (b) anisotropic ( $\epsilon = 0.1$ ) spirals.

表2具体给出了不同吸附率以及各向异性条件下螺旋间距随着界面厚度变化的定量误差,误差定义为螺旋间距取值偏离尖锐界面收敛解的相对程度,即  $Error = (l/d_0 - l^0)/l^0$ . 当无量纲化吸附率  $Fd_0^2/D$  为  $10^{-5}$  量级时,各向同性的螺旋生长表现出最为理想的模拟结果,在无量纲化台阶宽度  $W/d_0$  低于 16.7 时,螺旋间距的误差均小于 1%,因此可以在误差允许的范围内选取较大的台阶宽度以提高模拟尺度;而对于小面相生长,强各向异性的作用严重制约了数值模拟结果的收敛性,导致螺旋间距的误差普遍高于 1%,并且当  $W/d_0$  高于 16.7 时,螺旋间距表现出随界面厚度而剧烈增加的趋势.因此为了避免界面对模拟结果产生非



本征的影响, 应该选取  $W/d_0$  在 16.7 以内的适当台阶宽度以提高模拟精度. 当吸附率  $Fd_0^2/D$  提高至  $1.33 \times 10^{-4}$  时, 各向同性螺旋生长的收敛性明显降低, 其螺旋间距误差与  $10^5$  量级的小面相生长类似, 仅  $W/d_0$  在 16.7 以内时能够反映出螺旋间距的收敛趋势. 对于小面相生长以及吸附率继续增大的各向同性生长而言, 螺旋间距的误差将不会随界面厚度的降低而稳定收敛, 而是随台阶宽度表现出近线性变化的趋势, 此时螺旋生长表现为深过饱和条件下的快速生长, 界面的形成与推进由曲率控制向

着台阶动力学控制转变. 螺旋间距的模拟结果仅仅能够定性地反映出形貌学的一般规律, 无法对螺旋生长的动力学特征进行定量描述. 值得注意的是, 在 GaN 外延生长中,  $Fd_0^2/D = 6.68 \times 10^{-5}$  对应于  $F = 0.2$  ML/s, 是相对较大的吸附率作用, 实际的分子束外延和脉冲激光沉积方法的条件控制一般低于 0.1 ML/s. 因此可以认为, 在实验要求的吸附率区间内, 小面相以及各向同性的螺旋间距均处于可控的误差范畴, 相场模拟可以对六方小面相 GaN 表面的螺旋结构以及生长特征进行定量描述.

表 2 螺旋间距根据台阶宽度以及表面吸附率不同的定量误差

Table 2. Simulated errors of spiral spacings with the different step widths and the different rates of deposition.

台阶宽度 $W/d_0$	模拟误差 $Error/\%$					
	$Fd_0^2/D = 6.68 \times 10^{-5}$		$Fd_0^2/D = 1.33 \times 10^{-4}$		$Fd_0^2/D = 2.66 \times 10^{-4}$	
	$\varepsilon = 0.0$	$\varepsilon = 0.1$	$\varepsilon = 0.0$	$\varepsilon = 0.1$	$\varepsilon = 0.0$	$\varepsilon = 0.1$
11.13666	0.27338	3.31889	3.72133	4.07359	5.68697	10.78697
13.92083	0.49723	3.53188	3.45128	8.0551	7.68821	13.14449
16.705	0.61548	4.38153	3.94749	10.23108	9.81683	18.15537
19.48916	1.80439	6.44777	4.892	11.89077	13.27794	20.76647
22.27333	2.47803	8.9511	7.96767	14.73763	17.9827	24.20077
27.84166	4.39865	13.19633	15.20454	24.91455	29.44374	38.30915
33.40999	8.518	18.4014	24.46879	31.99378	40.22765	51.37382
38.97832	14.8836	23.28883	34.11724	42.68115	48.81824	58.58751

为研究吸附率作用下螺旋生长的动力学机理, 图 7 给出了各向同性与小面相生长时螺旋间距随吸附率的变化规律. 由图 7 可知, 螺旋间距  $l$  与表面吸附  $F$  呈现出明显的指数依赖性, 其中指数因子在各向同性与小面相螺旋生长中分别为  $\gamma = 0.297$  和  $0.301$ . 这表明各向异性几乎不影响螺旋间距随吸附率指数变化的整体趋势. 具体而言, 指数因子  $\gamma$  反映了螺旋生长的动力学机理, Cabrera 和 Coleman<sup>[39]</sup> 给了在不考虑逸出原子作用下一维台阶链的理论解表达式:  $l = A(d_0D/F)^{1/3}$ , 其中  $A$  为前置因子, 描述了螺旋与材料体系、外界条件相关的生长特征, 首次给了  $A = 4.236$ ; Eerden<sup>[40]</sup> 根据边界积分的方法得到了完全不同的取值; Karma 和 Plapp<sup>[31]</sup> 通过相场模拟求得特定尺度的  $A = 4.626$ . 在 GaN 体系中, 我们发现各向同性和小面相螺旋生长的  $A$  取值分别为 5.35 和

4.88.  $A$  的取值不同实际上反映了各向异性作用于界面曲率导致螺旋间距在尖锐界面下收敛解的差异. 指数因子的  $1/3$  反映了与材料特性无关的本征生长动力学特征, 只有当考虑岛边缘原子扩散、原子逸出等非平衡问题时, 螺旋间距才会表现出指数因子的变化. 从 GaN 螺旋生长的数值模拟可以看出,  $\gamma$  的取值接近于理论解的  $1/3$ , 能够比较合理地描述螺旋生长中的动力学问题. 此外, 各向异性虽然能够改变界面曲率, 导致平衡态以及界面原子密度在很大程度发生了改变, 从而对模拟结果收敛性产生较为明显的影响, 但是螺旋生长始终处于局域平衡态, 其界面附近并没有产生非平衡的原子运动, 因此从生长动力学机理上来看, 各向异性对局域平衡的螺旋生长的指数因子  $\gamma$  影响较小.

可以看到, 以上研究都是基于螺旋生长处于局域平衡态时的生长规律以及动力学机理. 当界面产

生非平衡的原子运动时, 界面动力学效应将对螺旋结构的界面演化以及生长形貌产生至关重要的作用. Karma 等<sup>[31]</sup>指出, 对于各向同性的螺旋生长, 当界面动力学作用逐渐增强, 螺旋生长从局域平衡态向着非平衡态转变时, 指数因子将缓慢地发生变化. 对于小面相生长的螺旋结构, 探索各向异性如何与界面动力效应产生作用, 并进一步调制螺旋生长特征与动力学机理, 能够深层次地揭示螺旋生长非平衡作用下的内在规律以及非平衡动力学过程对外延生长的定量影响规律.

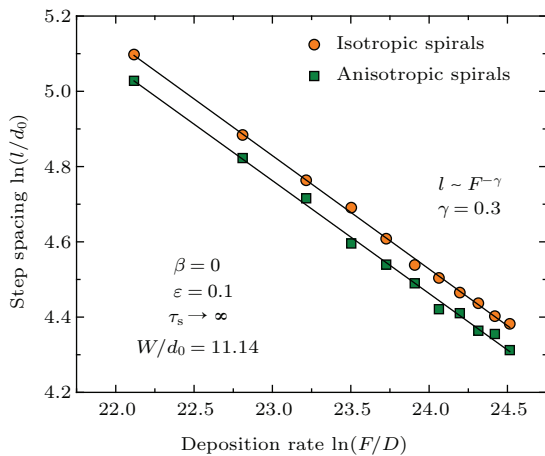


图7 螺旋生长动力学机理分析: 各向同性与小面相 ( $\epsilon = 0.1$ ) 生长稳态螺旋间距随表面吸附的指数相关性  
Fig. 7. Growth dynamics of scaling behaviors of spiral spacing  $l$  versus the deposition rate  $F$  in both isotropic and anisotropic ( $\epsilon = 0.1$ ) spirals.

通过将非瞬态的动力学附着 (attachment) 或者反附着作用 (detachment) 引入台阶的原子运动过程中, 台阶界面将无法保持瞬时的局域平衡态, 而是受到台阶速度相关的界面动力学作用. 假设原子由阶面向台阶的附着率 (attachment rate) 为  $k$ , 根据经典的 Gibbs-Thomson 关系, 台阶上的平衡原子密度将由曲率决定的  $d_0\kappa$  转变为  $d_0\kappa + \beta V$ , 其中  $\beta V$  为引入动力学附着过程以后产生的界面动力学项,  $\beta = 1/k$  为界面动力学系数,  $V$  为台阶推进速率. 当附着动力学作用增强时, 原子附着速率变慢, 表明界面原子由局域平衡态向非平衡过渡, 台阶推进由瞬态的原子平衡扩散向着动力学与台阶速率相关的原子弛豫过程转变. 图8给出了不同界面动力学作用下小面相螺旋生长的稳态形貌, 其中  $\beta d_0/D$  为无量纲化的动力学系数. 由图8可以看出, 随着动力学系数  $\beta$  的增大, 螺旋生长形貌由六方相向各向同性转变, 这是由于动力学项的引入改

变了界面平衡态, 较大的  $\beta$  值增加了平衡原子密度, 等效于削弱了界面曲率效应, 导致小面相生长界面表现出较小的尖端曲率.

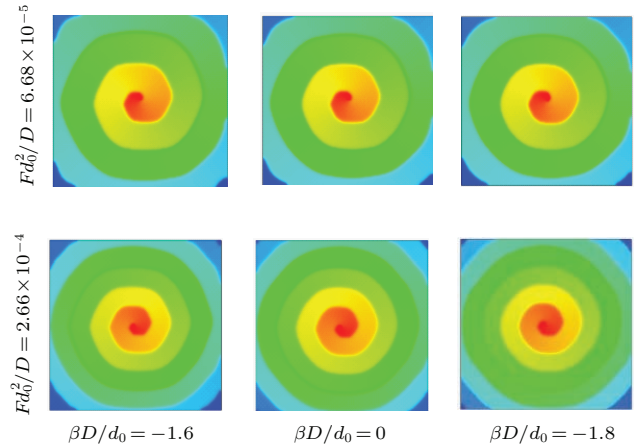


图8 (网刊彩色) 螺旋生长表面形貌依据不同吸附率以及界面动力学作用的变化趋势  
Fig. 8. (color online) Morphologies of spirals in conditions of different attachment rates and deposition rates.

值得注意的是, 在纯曲率控制条件下, 平衡原子密度的增加将会降低螺旋生长的过饱和度, 因此往往伴随着台阶推进速率的降低. 然而, 根据图9可以看出, 螺旋间距随着动力学系数  $\beta d_0/D$  的增加而表现出线性降低的趋势, 这表明在动力学控制的小面相螺旋生长中, 附着相关的界面动力学作用参与调制了界面演化与台阶推进, 界面动力学作用不仅增加了界面平衡原子密度, 而且提高了台阶推进速率, 促进了螺旋生长的进程. 当  $\beta d_0/D$  为负值时, 台阶生长主要受到反附着动力学作用的控制, 如果  $\beta d_0/D$  从负值向0靠近时, 反附着速率增加, 表明界面在同一时刻允许更多的原子脱离台阶重新回到阶面位置参与扩散, 因此台阶推进速率增加; 当  $\beta d_0/D$  为正值时, 台阶生长主要受到附着作用的调制, 如果  $\beta d_0/D$  从0向着正方向增加时, 附着速率降低, 表明界面在同一时刻限制了原子从阶面向台阶的附着, 标志着更多的原子回到了阶面的位置参与了台阶的推进, 因而台阶推进速率进一步提高. 这实际上反映出界面动力学作用驱使台阶由热力学曲率控制的平衡态向着非平衡转变的整体趋势: 通过附着/反附着原子运动的改变而影响台阶推进, 进而导致螺旋间距随着动力学系数的增加而降低.

通过图9还可以看到界面附着动力学与表面吸附率以及各向同性的耦合作用. 当吸附率增大

时,螺旋间距随界面动力学系数的增加而表现出更明显的降低趋势,这表明吸附率的增加有利于增强界面附着运动对局域平衡态的调制作用. 对于各向同性的螺旋结构,螺旋间距随  $\beta d_0/D$  的增加而整体降低,并且在  $\beta d_0/D = 0$  的位置取得极小值,这是由于  $\beta d_0/D = 0$  附近存在着从局域平衡态向非平衡态的转变,因而需要较大的界面动力学作用以摆脱平衡态势垒的束缚;而对于小面相螺旋生长而言,重整化模型的引入使得强各向异性作用下会产生更多非本征的动力学界面效应,导致台阶界面由稳定的局域平衡态转变为亚稳态,界面附着动力学作用更易于将小面相螺旋生长界面向非平衡态推进,因而小面相生长的螺旋间距在  $\beta d_0/D = 0$  附近仅随动力学系数降低而并没有表现出明显的极值或者起伏,螺旋间距更倾向于与动力学系数  $\beta$  线性相关

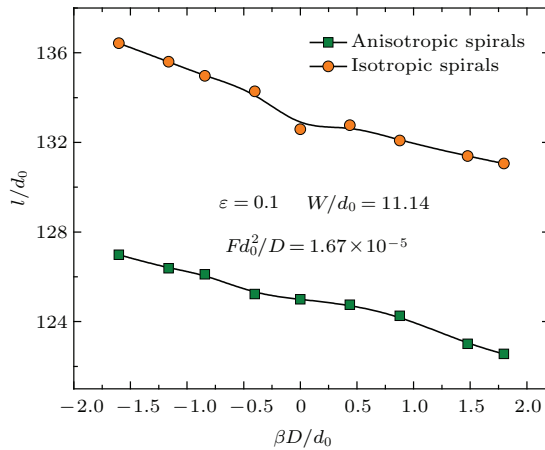


图9 各向同性与小面相 ( $\epsilon = 0.1$ ) 螺旋生长中稳态螺旋间距随附着动力学系数的变化  
Fig. 9. Comparison of spiral spacing as a function of kinetic coefficient  $\beta$  in the anisotropic ( $\epsilon = 0.1$ ) and isotropic spirals.

图 10 给出了界面动力学作用下螺旋的生长动力学机理. 可以看到界面附着动力学过程并没有改变螺旋间距随着吸附率指数变化的整体趋势,仅仅通过指数因子的变化调制螺旋生长机理,这与吸附率对螺旋生长的作用类似. 具体而言,随着动力学系数的增加,指数因子  $\gamma$  呈现出增加的趋势,这与 Karma 等 [31] 的结论是一致的. 此外,与小面相生长相比,各向同性螺旋生长的指数因子表现出更为敏感的动力学系数相关性,进一步论证了界面附着动力学过程对于局域平衡以及亚稳态螺旋生长不同的影响作用,说明小面相螺旋生长由于界面附着

动力学过程、非本征动力学作用以及强各向异性的耦合,导致动力学生长机理受到多方面因素的综合调制作用,因此对于单一的界面动力学系数表现为较低的依赖性.

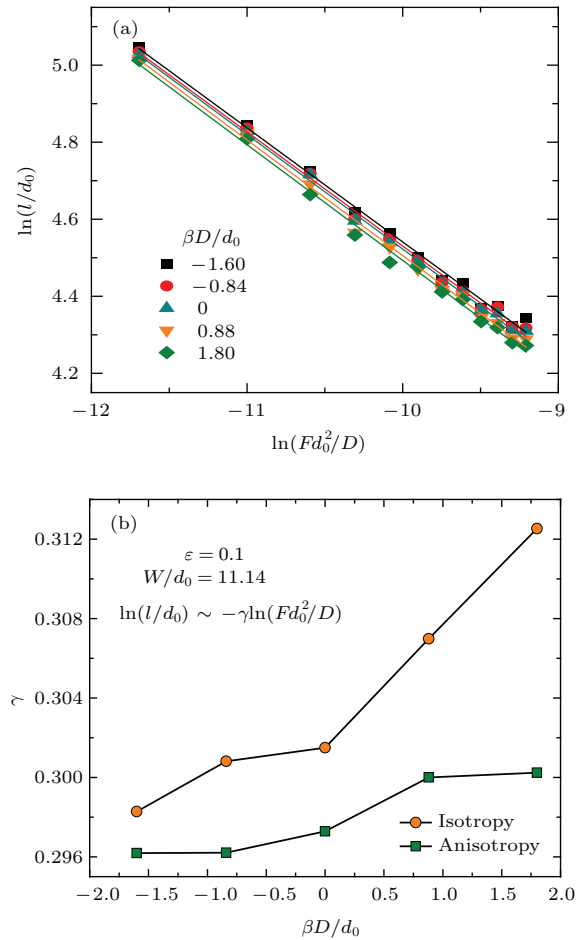


图 10 界面动力学作用对螺旋生长动力学特征的调制作用 (a) 不同动力学作用下小面相螺旋间距随吸附率的变化规律; (b) 各向同性与小面相生长中指数因子  $\gamma$  随附着动力学系数  $\beta$  的变化  
Fig. 10. Growth dynamics modulated by the different kinetic effects: (a) Related curves of spiral spacing versus the deposition rate in the anisotropic spirals ( $\epsilon = 0.1$ ) under the different kinetic effects; (b) the value of exponent  $\gamma$  as a function of kinetic coefficient  $\beta$  in the anisotropic ( $\epsilon = 0.1$ ) and isotropic spirals.

## 4 结 论

本文主要通过定量相场模型研究了六方 GaN 表面小面相螺旋结构在不同各向异性、表面吸附率以及界面动力学作用下的形貌特征与生长动力学机理. 主要结论如下.

- 1) 小面相螺旋生长的强各向异性通过影响界面生长尖端曲率调制界面局域平衡态与平衡原子

密度, 并且通过增强局域过饱和度提高台阶推进速率, 驱动螺旋生长向着利于台阶推进的方向进行, 并且降低了模拟结果的收敛性.

2) 表面吸附率通过台阶推进速率与过饱和度的变化反作用于界面尖端曲率, 使得吸附率的增加推进了螺旋生长的进程, 导致了稳态螺旋间距的降低, 同时降低了螺旋间距随界面厚度的收敛性. 螺旋间距随着吸附率的变化满足指数关系, 其中各向同性与小面相螺旋生长主要表现为前置因子  $A$  的差异, 而对于生长动力学机理相关的指数因子, 各向异性的作用没有产生明显的差异.

3) 原子的附着/反附着通过影响界面原子运动而产生界面动力学作用, 驱动台阶界面从局域平衡态向非平衡态转变, 随着动力学系数的增加, 台阶推进速率增大, 小面相螺旋生长呈现出从六方相向各向同性转变的趋势. 附着动力学系数的增加导致稳态螺旋间距的降低, 界面动力学系数对螺旋生长机理的影响规律主要体现为指数因子的调制作用, 而不改变螺旋间距随吸附率指数变化的整体趋势. 指数因子随着动力学系数的增大而缓慢增加. 此外, 小面相螺旋生长由于非本征动力学作用而处于亚稳态, 因此与各向同性相比表现出较低的界面动力学系数依赖性.

## 参考文献

- [1] Smereka P 2000 *Physica D* **138** 282
- [2] Sorge J B, van Popta A C, Sit J C, Brett M J 2006 *Opt. Express* **14** 10550
- [3] Hodgkinson I, Wu Q 2001 *Adv. Mater.* **13** 889
- [4] Liu Y, Li L 2011 *Nanotechnology* **22** 3990
- [5] Burton W K, Cabrera N, Frank F C 1951 *Philos. Trans. R. Soc. London Ser. A* **243** 299
- [6] Bennema P 1984 *J. Cryst. Growth* **69** 182
- [7] Lin E Y, Zhang Y X, Liao Y J, Mo Y J, Jiang S 2014 *J. Comput. Mater. Sci.* **90** 148
- [8] Dam B, Rector J H, Huijbregtse J M, Griessen R 1998 *Physica C* **305** 1
- [9] Vézian S, Natali F, Semond F, Massies J 2004 *Phys. Rev. B* **69** 125329
- [10] Dong X L, Xing H, Sha S, Chen C L, Niu L W, Wang J Y, Jin K X 2015 *Sci. China: Technol. Sci.* **58** 753
- [11] Kim S H, Dandekar P, Lovette M A, Doherty M F 2014 *Cryst. Growth Des.* **14** 2460
- [12] Cuppena H M, van Veenendaala E, van Suchtelen J, van Enkevorta W J P, Vlieg E 2000 *J. Cryst. Growth* **219** 165
- [13] Swendsen R H, Kortman P J, Landau D P, Muller-Krumbhaar H 1976 *J. Cryst. Growth* **35** 73
- [14] Ratsch C, Smilauer P, Vvedensky D D 1995 *Sur. Sci. Lett.* **329** L599
- [15] Caffisch R E, Gyure M F, Merriman B, Ratsch C 1999 *Phys. Rev. E* **59** 6879
- [16] Liu F, Metiu H 1997 *Phys. Rev. E* **19** 2601
- [17] Pierre-Louis O 2003 *Phys. Rev. E* **68** 021604
- [18] Otto F, Penzler P, Ratz A, Rump T, Voigt A 2004 *Non-linearity* **17** 477
- [19] Rätz A, Voigt A 2004 *Appl. Anal.* **83** 1015
- [20] Rätz A, Voigt A 2004 *J. Cryst. Growth* **266** 278
- [21] Beckermann C, Diepers H J, Steinbach I, Karma A, Tong X 1999 *J. Comput. Phys.* **154** 468
- [22] Karma A, Rappel W J 1996 *Phys. Rev. E* **53** 3017
- [23] Karma A, Rappel W J 1998 *Phys. Rev. E* **57** 4323
- [24] Echebarria B, Folch R, Karma A, Plapp M 2004 *Phys. Rev. E* **73** 061604
- [25] Ramirez J C, Beckermann C, Karma A, Diepers H J 2004 *Phys. Rev. E* **69** 051607
- [26] Folch R, Plapp M 2003 *Phys. Rev. E* **68** 010602
- [27] Wang Z J, Wang J C, Yang G C 2010 *Chin. Phys. B* **19** 017305
- [28] Xing H, Wang J Y, Chen C L, Jin K X, Du L F 2014 *Chin. Phys. B* **23** 038104
- [29] Xing H, Dong X L, Chen C L, Wang J Y, Du L F, Jin K X 2015 *Int. J. Heat. Mass. Tran.* **90** 911
- [30] Duan P P, Xing H, Chen Z, Hao G H, Wang B H, Jin K X 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 60201 (in Chinese) [段培培, 邢辉, 陈志, 郝冠华, 王碧涵, 金克新 2015 物理学报 **64** 60201]
- [31] Karma A, Plapp M 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 4444
- [32] Yu Y M, Liu B G, Voigt A 2009 *Phys. Rev. B* **79** 235317
- [33] Redinger A, Ricken O, Kuhn P, Rätz A, Voigt A, Krug J, Michely T 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 035506
- [34] Kobayashi R 1993 *Physica D* **63** 410
- [35] McFadden G B, Wheeler A A, Braun R J, Coriell S R, Sekerka R F 1993 *Phys. Rev. E* **48** 2016
- [36] Fierro F, Goglione R, Paolini M 1998 *Math. Mod. Meth. Appl. Sci.* **8** 573
- [37] Eggleston J, McFadden G B, Voorhees P W 2001 *Physica D* **150** 91
- [38] Neugebauer J 2001 *Phys. Stat. Sol.* **227** 93
- [39] Cabrera N, Coleman R V 1963 *The Art and Science of Growing Crystals* (New York: John Wiley) p3
- [40] van der Eerden J P 1981 *J. Cryst. Growth* **53** 305

# Phase-field modeling of facet hexagonal spirals with anisotropy, deposition, and kinetic effects\*

Dong Xiang-Lei Xing Hui Chen Chang-Le<sup>†</sup> Sha Sha Wang Jian-Yuan Jin Ke-Xin

(Shaanxi Key Laboratory for Condensed Matter Structure and Properties, School of Science, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710129, China)

( Received 7 September 2015; revised manuscript received 3 December 2015 )

## Abstract

In this paper, we perform the quantitative phase-field simulations based on the surface morphology and growth regime of the hexagonal GaN spiral structure. We investigate the highly anisotropic energy, the deposition rate and the kinetic attachment and detachment effects. A regularized equation including the modified gradient coefficient is employed to study the anisotropic effect. Results show that the highly anisotropic energy modulates the equilibrium state by changing the local curvature of the tip step and thus leading to the changed spiral spacing. Under the weak anisotropy, the spiral spacing and morphology keep stable with the increase of the anisotropic strength. In the case of facet anisotropy, however, the larger anisotropic strength facilitates the spiral growth due to the local interfacial instability caused by increasing the supersaturation for the tip step. As to the effect of deposition, the deposition rate imposes the reaction on the curvature of interface due to the variations of supersaturation and step velocity. The larger rate of deposition enables the shorter spacing for both anisotropic and isotropic spirals. We carry out a convergence study of spiral spacing with respect to the step width to estimate the precision of the phase-field simulation. Results show that the larger deposition rate and the higher anisotropy give rise to the lower convergence of the spiral model. Moreover, we find that the kinetic attachment affects the instinct regime of spiral growth by changing the step spacing and the scaling exponents of spiral spacing versus deposition rate. The anisotropic spiral exhibits the more significant hexagonal structure and the lower value of step velocity by reducing the value of kinetic coefficient. The scaling exponent decreases with anisotropy increasing, but it increases with kinetic effect strengthening. The highly anisotropic energy contributes to weakening the sensitivity of the spiral spacing to the kinetic effect.

**Keywords:** computer modeling and simulation, surface patterning, film growth and deposition, kinetics

**PACS:** 07.05.Tp, 81.65.Cf, 81.15.-z, 68.43.Mn

**DOI:** 10.7498/aps.65.020701

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61471301, 51172183, 51402240, 51471134), the National Natural Science Foundation of Shaanxi Province, China (Grant No. 2015JQ5125), the Doctorate Foundation of Northwestern Polytechnical University, China (Grant No. CX201325), the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant No. 3102015ZY078), and the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education, China (Grant No. 20126102110045).

† Corresponding author. E-mail: [chenchl@nwpu.edu.cn](mailto:chenchl@nwpu.edu.cn)