

吸着原子の流れによる Si(001) 微斜面上での ステップのパターン形成

佐藤 正英^{*1}・上羽 牧夫^{*2}

(受理2003年8月26日, 掲載決定2004年1月10日)

Pattern Formation of Steps on a Si(001) Vicinal Face with Drift of Adatoms

Masahide SATO^{*1} and Makio UWAHA^{*2}

^{*1}Information Media Center of Kanazawa University, Kanazawa University,
Kakuma-machi, Kanazawa 920-1192

^{*2}Department of Physics, Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8602

(Received August 26, 2003, Accepted January 10, 2004)

1. はじめに

等間隔に並んだ直線のステップからなる微斜面は、ステップ間の引力による不安定化¹⁻⁶⁾が起きない限り平衡状態では安定である。しかし、結晶の成長時や、融解・昇華時には、等間隔な直線ステップ列が不安定になることがある。シリコンの場合には、結晶を直流電流で加熱することで、ステップが束状になるバンチングや、直線ステップが曲がりだす蛇行と呼ばれる現象が起きる。これらの不安定化の観察は、特に(111)微斜面で多く行われており⁷⁻¹³⁾、(111)微斜面上を念頭に置いた理論的な研究¹⁴⁻²⁷⁾も多くなされている。

不安定化の原因は、電流により生じる吸着原子の流れと考えられている。この流れの原因を第一原理から考えた研究²⁸⁾もあるが、電流と流れの関係は微視的な尺度からは明らかになっていない。しかし、実験的には、電流による結晶表面の形状の変化を観察することで、広い温度領域で電流と同方向に吸着原子の流れがあることが分かっている²⁹⁾。そこで、現象論的に吸着原子の流れを取り入れると、ステップ束の成長則^{19,21,24)}や束内のステップ密度のサイズ依存性^{20-22,24)}などを含めてバンチングの様子が説明できる。蛇行についても、蛇行による結晶表

面の形状の変化だけではなく、揺らぎ幅の時間依存性、微斜面の傾きや吸着原子の流れの速さと揺らぎの波長の関係などが説明できる^{26,27)}。

シリコン微斜面上のステップの不安定化は(001)微斜面でも観察されている³⁰⁻³²⁾。(111)微斜面では、電流がステップの上段向きか下段向きのいずれか一方でバンチングが起きるのに対し、(001)微斜面では電流の向きによらずバンチングが起きる。また、(111)微斜面ではステップに対して下段向きの電流で蛇行が起きるのに対して、(001)微斜面では上段向きの電流で蛇行が起きる³²⁾。

(111)微斜面と(001)微斜面の大きな違いは、(001)微斜面での表面構造の再配列である。(001)微斜面では表面原子がダイマーをつくり、 2×1 構造が基本構造になる。 $\langle 110 \rangle$ 方向に傾いた微斜面ではダイマーの向きがステップに対して垂直である 2×1 構造のテラスと、ダイマーの向きが90度回転した 1×2 構造のテラスが交互に現れる。また、異なったステップが交互に現れ、上段側に 2×1 構造のテラスがあるステップに比べ、 1×2 構造のテラスを持つステップが荒れている。

素朴に考えても 2×1 構造により拡散係数の異方性が生じると考えられ、(001)微斜面では表面拡散の異方性が異なるテラスが交互に現れることになる。また、荒れたステップと直線的なステップが現れるということは、2種類のステップでステップ・スティフネスやカイネティック係数などが異なるということである。

^{*1} 金沢大学総合メディア基盤センター (〒920-1192 金沢市角間町)

^{*2} 名古屋大学理学研究科 (〒464-8602 名古屋市中区不老町)

以下では、シリコン(001)微斜面を念頭に置いて拡散係数の異方性またはカイネティック係数の変化を考慮に入れ、吸着原子の流れを取り入れたステップ流モデル³³⁻³⁹⁾を用いて、ステップの不安定化について調べた結果を紹介する。

2. モデル

ステップ流モデル (step flow model) は、個々の原子の運動に比べて大きな空間尺度、ゆっくりした時間尺度でのステップの運動を調べるときに有効である。個々の原子の挙動を追うかわりに、テラス上での吸着原子の密度を考える。テラス上で吸着原子密度が高ければ、テラス上には二次元核が作られて、そこから結晶の成長が起きる。また、逆に吸着原子密度が低ければ、テラス上に穴ができて、そこから結晶の融解が起きるだろう。このモデルでは、このようなテラス上での核生成や穴の生成が起きないものとし、ステップ位置のみで吸着原子の固化や融解が起きるとする。吸着原子の固化や融解が起きるステップを吸着原子の紐状の取り込み口として考え、ステップでの固化・融解の過程を境界条件として拡散方程式を解いて吸着密度を決める。そこからステップへの原子の流入量を見積もり、ステップの速度を導出するモデルである。

上の大雑把な筋書きを式で表わせれば以下ようになる。吸着原子密度 $c(r, t)$ の従う拡散方程式は、

$$\frac{\partial c^{(m)}}{\partial t} = D_x^{(m)} \frac{\partial^2 c^{(m)}}{\partial x^2} + D_y^{(m)} \frac{\partial^2 c^{(m)}}{\partial y^2} - \frac{D_y^{(m)} F \partial c^{(m)}}{k_B T \partial y} \quad (1)$$

と表わせる。(1)式で、 m は m 番目のテラスを表す。第1項および第2項は x 方向への拡散、 y 方向への拡散を表し、 $D_x^{(m)}$ 、 $D_y^{(m)}$ はそれぞれ x 方向、 y 方向の拡散定数である。第3項は吸着原子の流れの効果を表わしている。 F は吸着原子の流れを引き起こす力で、吸着原子の流れの速度の平均値 $\langle v^{(m)} \rangle$ と

$$\langle v^{(m)} \rangle = \frac{D_y^{(m)} F}{k_B T} \quad (2)$$

の関係にある。この吸着原子の流れをドリフト流と呼ぶことにする。(1)式では蒸発の効果は無視し、吸着原子の流れは y 方向にあるとした。以下ではステップは平均的に x 軸に平行で、ステップ下段方向を y 軸の正方向とする。

拡散と吸着原子のドリフト流の両方の効果を合わせた吸着原子の流れ $j^{(m)}(r, t)$ は、

$$j^{(m)}(r, t) = -D_x^{(m)} \frac{\partial c^{(m)}}{\partial x} e_x - D_y^{(m)} \left(\frac{\partial c^{(m)}}{\partial y} - \frac{F c^{(m)}}{k_B T} \right) e_y \quad (3)$$

で与えられる。 m 番目のテラスの上段側にあるステップ

を m 番目のステップとすると、ステップ位置での吸着原子の保存則から得られる境界条件は

$$K_m(c^{(m-1)}|_{\zeta_- - c_{eq}^{(m)}}) = j^{(m-1)} \cdot \hat{n}_m|_{\zeta_-} - P_m(c^{(m-1)}|_{\zeta_- - c^{(m)}|_{\zeta_+}}) \quad (4)$$

$$K_m(c^{(m)}|_{\zeta_+ - c_{eq}^{(m)}}) = -j^{(m)} \cdot \hat{n}_m|_{\zeta_+} - P_m(c^{(m)}|_{\zeta_+ - c^{(m-1)}|_{\zeta_-}}) \quad (5)$$

で与えられる⁴⁰⁾。ここで、ステップ位置が $y = \zeta(x)$ で与えられるとした。 $+$ ($-$)は下段(上段)側のテラスを意味し、 $\hat{n}_m$ はステップの法線ベクトルを表わしている。 $c_{eq}^{(m)}$ は m 番目のステップを静止した状態に保つのに必要な吸着原子密度、つまり平衡原子密度を表わしている。ステップが曲がったり、等間隔でなくなると、ステップ・スティフネスの効果やステップ間相互作用により平衡原子密度は一定値 c_{eq}^0 から値がずれる。

(4)式と(5)式の右辺第1項は、ステップへ流れこむ吸着原子の流れを表わしている。上段のテラスから流入する原子の数は $j^{(m-1)} \cdot \hat{n}_m|_{\zeta_-}$ 下段のテラスから流入する原子の数は $-j^{(m)} \cdot \hat{n}_m|_{\zeta_+}$ となる。さらにステップの上段側と下段側で吸着原子の密度差があれば、吸着原子の一部は密度差を埋め合わせるようにステップを越えて流れる。(4)式と(5)式の右辺第2項がこの効果を表わしており、流れが密度差に比例するとした。パラメータの P_m は密度差を埋め合わせる強さを表わしている。 $P_m \rightarrow \infty$ ならば密度差はすぐに埋め合わせられ、上下段の吸着原子の密度差は存在しない。このようなステップを完全透過性ステップと呼ぶことにする。逆に $P_m = 0$ ならば密度差を埋め合わせることができない。このようなステップを非透過性ステップと呼ぶことにする。ステップへの吸着原子の流れと隣接テラス間の密度差の緩和に使われた原子の数の差がステップで固化する原子の数になる。(4)式と(5)式の左辺がこれを表わし、ステップ位置での過飽和度に比例するとした。比例係数 K_m はカイネティック係数と呼ばれ、 K_m が大きければわずかな過飽和度でもステップでの固化が頻繁に起こるのに対して、小さければなかなか固化が起きない。

(4)式と(5)式を境界条件として(1)式の拡散方程式を解くことで結晶表面上での吸着原子密度が決まる。(1)式において時間依存性をきちんと取り込もうとすると問題はかなり複雑になってくる。現実的には、ステップの運動による吸着原子分布の変化はステップの運動より十分に速い。そこで、準静的近似 ($\partial c^{(m)}/\partial t = 0$) のもとで(1)式を解き吸着原子密度を決め、ステップ速度

$$V_m = \Omega K_m(c^{(m-1)}|_{\zeta_- - c_{eq}^{(m)}}) + \Omega K_m(c^{(m)}|_{\zeta_+ - c_{eq}^{(m)}}) = \Omega(j^{(m-1)} \cdot \hat{n}_m|_{\zeta_-} - j^{(m)} \cdot \hat{n}_m|_{\zeta_+}) \quad (6)$$

を求める。ここで Ω は原子面積を表わしている。

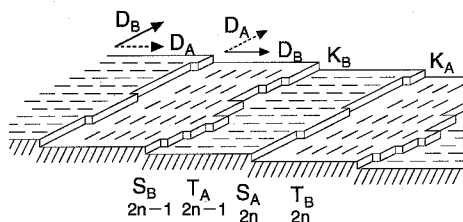


図1 シリコン(001)微斜面。テラス上の線分はダイマーを表わす。

シリコン(001)微斜面を念頭におき、 T_A と T_B の2種類のテラスが交互に現れるとしよう。 T_A では y 方向の拡散係数が D_A 、 x 方向の拡散係数が D_B であるとする。ダイマーの向きの変化を反映して T_B では拡散係数が入替わるとする。 T_A の下段側のステップを S_A 、 T_B の下段側のステップを S_B と呼び、カイネティック係数を K_A 、 K_B とする。ステップの荒れの違いにより、 K_A と K_B も異なるとする。偶数番目のステップを S_A 、奇数番目のステップを S_B とすると、 $(D_x^{(2n-1)}, D_y^{(2n-1)}) = (D_B, D_A)$ 、 $(D_x^{(2n)}, D_y^{(2n)}) = (D_A, D_B)$ 、 $K_{2n-1} = K_B$ 、 $K_{2n} = K_A$ となる(図1)。

ステップ流モデルでは固化・融解の過程と表面拡散の過程を区別している。ここでは、ステップの不安定化でどちらの過程が重要なのか知りたいので、拡散係数が入替わる場合とカイネティック係数が入替わる場合を分けてドリフト流によるステップの不安定化について考察する。拡散係数の違いを取り入れる時には $D_B > D_A$ とし、カイネティック係数の違いを取り入れる時には $K_B > K_A$ とする。

3. バンチング

シリコン(111)微斜面のモデルは(1)式で $D_x = D_y$ として拡散係数の異方性を無視し、 $K_A = K_B$ としてカイネティック係数の違いがないとしたモデルに対応する。この場合、完全透過性ステップ($P \rightarrow \infty$)ならば、(1)式のように表面拡散にドリフト流が加わっただけではバンチングは生じない。吸着原子の蒸発が加わるとステップ上段向きのドリフト流でバンチングが生じる。非透過性ステップ($P=0$)ならば、表面拡散場にドリフト流が加わっただけの場合でも、蒸発も加わった場合でもステップ下段向きのドリフト流でバンチングが起きる。

このようにシリコン(111)微斜面のモデルではステップの透過性によりバンチングが起きる条件が変わった^{22,25)}。(001)微斜面のモデルの場合にも、透過性の違いがバンチングを起こす条件に重要かもしれない。したがって、ここでも透過性の違いを考慮して、非透過性ス

テップの場合と完全透過性ステップの2つの極端な場合についてバンチングが起きる条件を調べることとする。

3.1 非透過性ステップの場合

非透過性ステップの場合には、それぞれのテラスの拡散場が完全に分離される。両端のステップでの平衡密度が決まれば、あるテラスでの吸着原子密度に他のテラスで吸着原子の分布がどうなっているかは関係ない。以下では、ステップを直線として1次元ステップ流モデルを用いる。

3.1.1 拡散係数が変わる場合

拡散係数が交互に入替わる場合を調べよう。カイネティック係数が大きい極限での微斜面の運動を考える。ステップ間相互作用は無視すると、微斜面上どこでも密度は一定値 c_{eq}^0 になっている。 $f = F/k_B T$ と書けば、吸着原子の流れは T_A では $j_A = D_A f c_{eq}^0 \hat{e}_y$ となり、 T_B では $j_B = D_B f c_{eq}^0 \hat{e}_y$ となる。この流れの差によってステップが動くから、 S_A の速度 V_A と S_B の速度 V_B は

$$V_A = -V_B = \Omega(j_A - j_B) \cdot \hat{e}_y = \Omega(D_A - D_B) f c_{eq}^0 \quad (7)$$

で与えられる³³⁾。 $D_B > D_A$ と仮定したので、ドリフト流がステップ下段方向($f > 0$)ならば、 S_A は後退し S_B は前進する。ドリフト流が逆向きならステップも逆に動くが、いずれの場合も片方のテラスが拡大しステップ対が形成される。

ドリフト流により微斜面がどのような構造になるかは、ステップ間相互作用も考慮して適切な境界条件で拡散方程式を解いてステップの運動を調べれば分かる。図2はそうして得られたステップの運動で、カイネティック係数が大きい場合を表わしている。点線と実線は S_A と S_B の位置の変化を表わしており、縦軸の時間と横軸のステップ間距離は適切に規格化してある。

初期段階では点線と実線が組みになっている。これはステップが対を作ったことに相当する。時間が経つとともに線が集まり、いくつかの束ができる。このようにステップが集まって束になることがバンチングである。図2(a)は下段向きのドリフト流の場合、図2(b)は上段向きのドリフト流の場合でドリフト流の向き以外は同じ条件である。ドリフト流が下段向きのステップの束は上段向きの束に比べて密なので少々見にくい。図2(a)では T_B が広がり、図2(b)では T_A が広がっている。カイネティック係数が大きい場合には、ドリフト流の向きにより広がるテラスの違いがあり、束の成長速度は y 方向の拡散係数が大きい T_B テラスが広がる場合の方が速い。ドリフト流の向きによらず初期にはステップ対ができ、束の衝突合体が繰り返され束は大きくなる。バンチングの過程では、単独のステップは現れず、ステップ対が基本単位となっている。

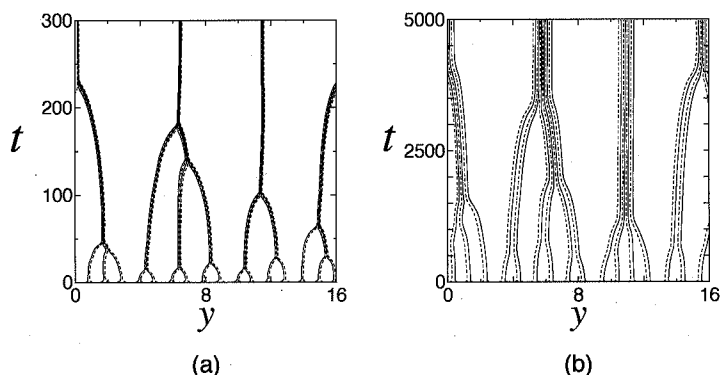


図2 カイネティック係数が大きい場合のバンチング。ドリフト流の向きは(a)下段向き、および(b)上段向き。

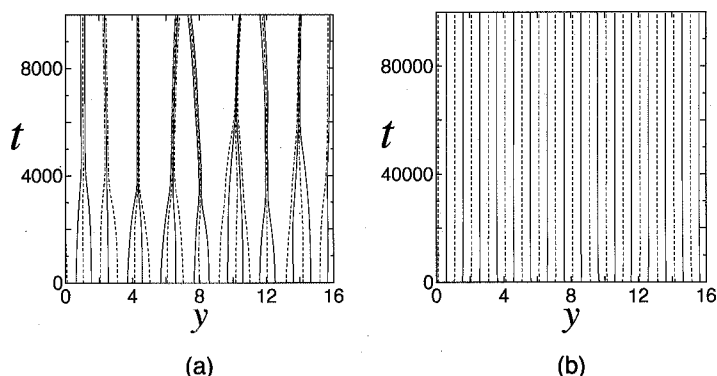


図3 カイネティック係数が小さい場合のバンチング。ドリフト流の向きは(a)下段向き、および(b)上段向き。

カイネティック係数が小さいとステップの運動はだいぶ異なる。ドリフト流が下段向き（図3(a)）ではバンチングが起きるが、上段向き（図3(b)）ではバンチングは起きない。バンチングの初期段階でもステップ対がきちんとできず、数本のステップが集まって束ができる。また、広いテラスの種類はドリフトの向きでは決まらず、 T_A と T_B が混在している。

カイネティック係数の大きさによるバンチングの違いの原因を考えてみよう³⁸⁾。ステップ間隔が l の微斜面が不安定化し、 T_B の幅が $l+\Delta l/2$ 、 T_A の幅が $l-\Delta l/2$ になったとする。このときのテラス幅の差 Δl の変化率を計算したのが、図4および図5である。

図4がカイネティック係数が大きい場合の変化率を表わしている。ドリフト流が下段方向（図4(a)）の場合には、微斜面では微係数は正（ $d\Delta l/dt > 0$ ）なので $d\Delta l/dt = 0$ を満たすまで T_B が広がる。ドリフト流が上段方向（図4(b)）では、微斜面で $d\Delta l/dt < 0$ なので、 T_A テラスが広がる。いずれの場合にも、広いテラスの間にきつく

束縛し合うステップ対ができ、図2の初期段階と一致している。

図5はカイネティック係数が小さい場合の Δl の変化率を表わす。ドリフト流が下段方向（図5(a)）の場合には、図4(a)とは異なり3つの定常点が現れる。 $\Delta l=0$ 近傍の定常点は不安定で、他の2つは安定な定常点である。不安定な定常点では $\Delta l < 0$ となっているので、テラス幅の揺らぎがなければ T_B が広がるが、微斜面に有限な大きさの揺らぎが加われば、 T_A が広がらう。どちらのテラスが広がるかは初期に与えた揺らぎにより決まる。図3(a)で2種類のテラスが混在しているのは、初期条件のテラス幅の揺らぎをランダムに与えたためである。

ドリフトが上段方向（図5(b)）の場合には、図4(b)と同じように安定な定常点が1つだけ存在する。図3(b)ではテラス幅はほとんど変化せずに微斜面が安定にみえるのは、定常点では $\Delta l \approx 0$ だからである。

3.1.2 カイネティック係数が変化する場合

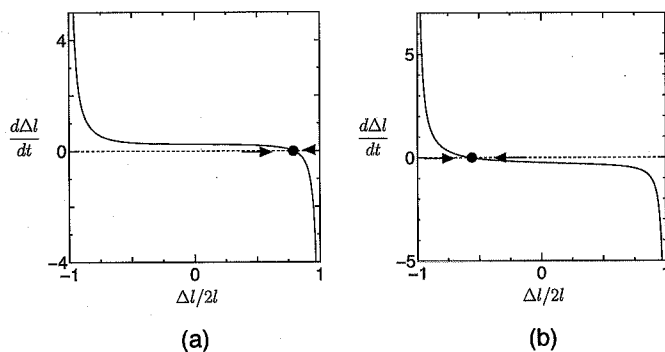


図4 カイネティック係数が大きい場合の Δl の変化率. ドリフト流の向きは, (a)下段方向および(b)上段方向.

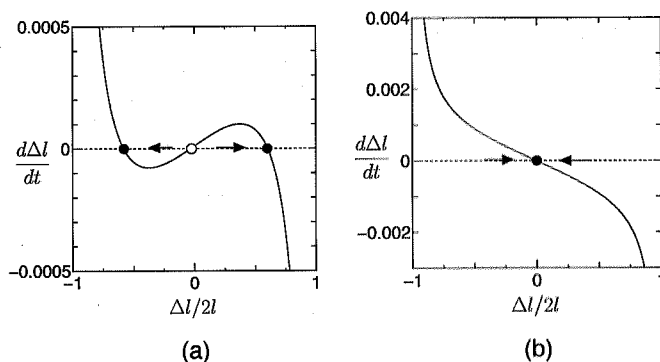


図5 カイネティック係数が小さい場合の Δl の変化率. ドリフト流の向きは, (a)下段方向および(b)上段方向.

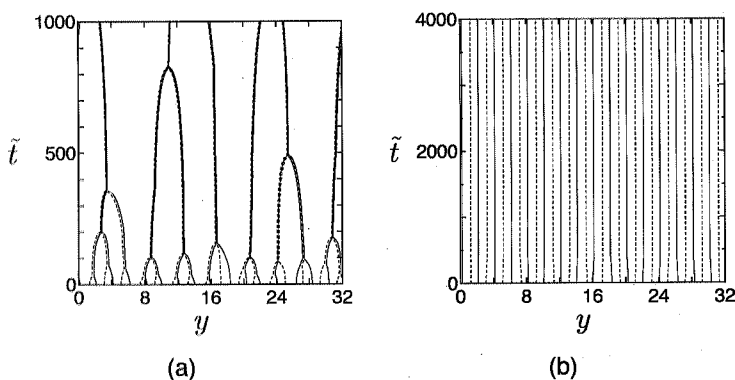


図6 カイネティック係数が大きい場合のバンチング. ドリフト流の向きは, (a)下段方向および(b)上段方向.

次に, 拡散係数 D_A と D_B には差がないとして, カイネティック係数が交互に入替わる場合のバンチングを調べてみよう. 安定性解析³⁸⁾によると, 拡散係数が変わる場合と同様に, ドリフト流により微斜面は不安定である. しかし, 拡散係数が変わる場合とは異なり, ステップの動く向きは吸着原子の流れの向きにはよらない. 動く向きはカイネティック係数の大小関係で決まり, $K_B > K_A$ な

らば, S_A は前進し S_B は同じ速さで後退する.

図6は, カイネティック係数が大きい時のステップ位置の時間変化を表わしている. 下段向きのドリフトがある場合(図6(a))にはバンチングが起きる. しかし, 初期段階では必ずしも対形成は起きず, 3本のステップによる束の形成などもみられる. また, ドリフト流が上段向きの時(図6(b))にはステップの束はできない.

図6のステップの運動は、一見安定性解析とは一致しておらず、拡散係数が入替わる場合でのカイネティック係数が小さい図3の場合の運動と似ている。実際、テラス幅の差の変化率(図7)を計算してみると図5と同じ形をしている。図6(a)を図3(a)と比較すると初期揺らぎの影響が少ないように見えるが、これは不安定定常点の $\Delta l=0$ からのずれが図3(a)よりわずかに大きいからである。

3.2 完全透過性ステップの場合

透過性ステップの場合には、隣合ったテラスの拡散場が互いに影響を及ぼし合うので、(6)式から求めた速度の式を数値計算するのはかなり面倒なものになる。ここでは手法を変えて、格子モデルによるモンテカルロ・シミュレーションでステップの運動を調べよう^{36,37)}。

立方格子モデルを考え、 x 方向には周期的境界条件、 y 方向には高さをステップの本数分の段差だけ変えて面をつなぐ境界条件を用いる。固体原子と吸着原子を区別して、格子点上には有限の密度で吸着原子を配置する。低過飽和度の極限で(1)式と同等になるように、これら

の吸着原子を格子点上を確率的に移動させる。ダイマール列の効果は、隣接格子点への遷移確率を x 方向と y 方向で違ったものにする事で取り込む。固化・融解はステップに隣接した格子点でのみ起きるとして、結晶化による結合エネルギーの利得と化学ポテンシャルの変化から固化・融解の確率を決める。以下では、簡単のためにSolid-on-Solid型(1本のステップの位置 $y(x)$ が一価関数)のステップを用いる。

図8は、拡散の異方性を考慮したときのバンチングを示すスナップショットである。2種類のステップのカイネティック係数の違いは無視しており、完全透過性ステップの場合に対応する。ドリフト流の向きによらずバンチングが起きているが、上段向きドリフトの時のほうが束の成長が遅い。これらは、ステップが非透過性でカイネティック係数が大きい時(図2)と対応している。

図9は、ステップのカイネティック係数の違いだけを取り入れ、拡散係数の異方性を無視した場合のスナップショットである。ステップ間の斥力を取り入れていないのでステップの揺らぎは大きい、束はできない。カイネテ

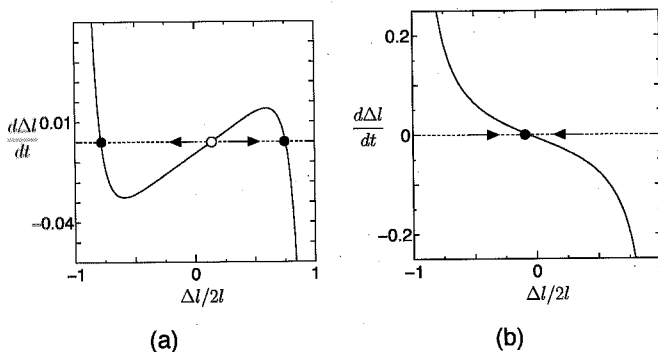


図7 カイネティック係数が大きい場合の Δl の変化率。ドリフト流の向きは、(a)下段方向および(b)上段方向。

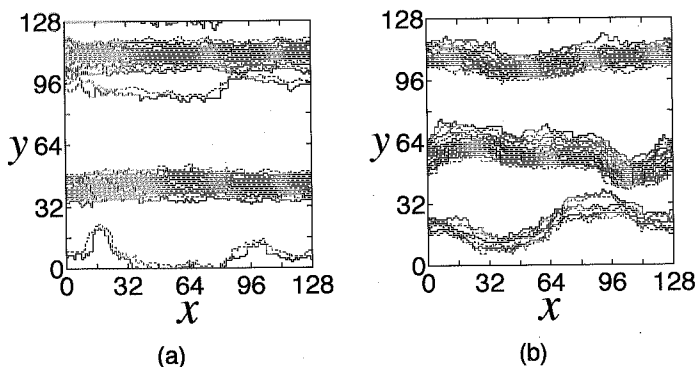


図8 拡散係数の異方性があるときの透過性ステップのバンチング。(a)下段向きの吸着原子の流れ、(b)上段向きの吸着原子の流れ。

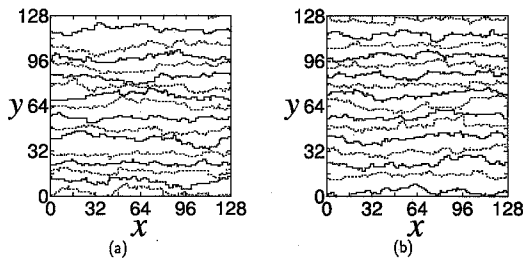


図9 拡散の異方性はなく、2種類のステップにカインetik係数の違いがあるときの透過性ステップの運動。(a)下段向きの吸着原子の流れ、(b)上段向きの吸着原子の流れ。

イック係数の違いは、吸着原子密度が平衡値からずれているときに現れる。完全透過性ステップなら、原子の出入りや吸着原子の蒸発がないかぎり、原子の密度はどこでも平衡密度になっているのでパンチングが起きない。

Litvin らの実験³⁰⁾では、ステップ間隔がある値より大きければ、電流の向きによらずパンチングが生じ、広がるテラスの種類は電流の向きにより決まった。電流の向きを変えることは、このモデルではドリフト流の向きを変えることに相当する。シミュレーションでは f の符号を変えることで表わされる。実験とシミュレーションとの対応を考えると、図8に対応しており、カインetik係数の違いより拡散係数の違いのほうが重要だと言える。また、ステップは透過性ステップであるか、カインetik係数が大きい非透過性ステップに相当すると考えられる。カインetik係数が大きい極限を考えれば、ステップ位置では局所平衡が成りたち $c|_{\zeta+} = c|_{\zeta-} = c_{eq}$ となるので、非透過性ステップと透過性ステップの区別もなくなってしまう。したがって、透過性が高いかあるいはカインetik係数が大きいステップで、テラスの拡散係数の異方性を取り入れれば、Si(001)微斜面のパンチングは説明できそうである。

4. 蛇行

パンチングについて調べた結果から、Si(001)微斜面のモデルとしては完全透過性ステップで拡散係数の違いを取り入れたモデルを使うのが最も簡単で良さそうである。図8を良くみるとドリフト流が下段方向にある場合(図8(a))ではステップの束は直線的であるのに対して、上段方向にある場合(図8(b))には束が大きく波打っていることに気づく。そこで、強いステップ間斥力を仮定してパンチングを抑え、蛇行の有無を調べよう³⁷⁾。

図10はステップ間に強い斥力を取り入れた時のスナップショットである。ドリフトが下段向きの時(図8(a))

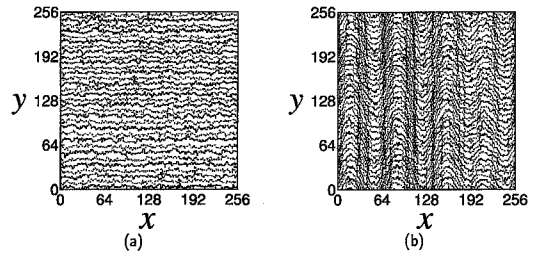


図10 拡散係数の異方性があるときの透過性ステップの蛇行。(a)下段向きの吸着原子の流れ、(b)上段向きの吸着原子の流れ。

には、斥力によりパンチングは抑えられ、蛇行も起きないので微斜面は安定である。これに対して、ドリフト流が上段向きの時(図8(b))にはステップが位相をそろえて蛇行し、 y 方向に直線的な溝ができる。

上段向きのドリフト流でステップ列の蛇行が起きることは、線形安定性解析³⁷⁾からも示せる。解析の詳細についてはここでは省略するが、ステップ間に斥力があることと拡散係数に差があることで、直線的なステップ列は長波長の揺らぎに対して不安定になり蛇行する。線形安定性解析から期待されるもっとも不安定な揺らぎの波長は

$$\lambda_{\max} = 2\pi \frac{D_B - D_A}{D_B + D_A} \sqrt{\frac{2\Omega\beta}{|F|}} \quad (8)$$

となる。ここで β はステップ・スティフネスである。現実には、両ステップでスティフネスの違いがある⁴⁴⁻⁴⁶⁾が、シミュレーションと線形安定性解析では無視した。図10(b)は不安定化の初期段階であるが、図で見られる溝の周期と(8)式で与えられる波長はおおよそ一致している。

線形安定性解析からは蛇行が起きる条件が分かるだけである。非線形項まで取り込んでステップの時間発展を記述する方程式を導出すると、溝状構造が現れることを示せる³⁷⁾。系の運動を表わす非線形発展方程式は、蒸発がなく、ステップが下段側のテラスから原子を取り込んで成長する系の蛇行を記述する式⁴⁴⁻⁴⁶⁾と同じである。吸着原子の蒸発が無視できることが溝状構造をつくるために重要であることが分かる。非線形発展方程式の解析から、ステップの蛇行の振幅は時間の $1/2$ 乗のベキで増加し、溝の波長が $1/6$ 乗で長くなること^{45,46)}が期待される。ここで紹介したシミュレーションでも、振幅の変化や溝の波長の変化を調べると、非線形発展方程式から期待されるベキと同じベキで変化していることが確かめられる³⁷⁾。

シリコン(001)微斜面でのステップの蛇行は、Nielsen

らによって観察されている³²⁾。この実験では結晶表面上に浅いお椀状の穴を掘り直流電流を流すことで、ステップ上段向きに電流が流れる部分とステップ下段向きに電流が流れる部分を同時に作り、ステップのふるまいを観察した。勾配が緩やかな穴の底付近では電流の向きによらずバンチングが起きるが、勾配が急（といっても0.08～0.5度くらい）になると、上段向きの部分では蛇行によってステップに垂直な溝状構造が現れる。勾配が急になるとステップ間隔が狭くなるので、相対的にステップ間の斥力が強くなることに対応する。電流の方向と吸着原子の流れの方向は同じなので^{47,48)}、ステップ間に斥力がある時に上段向きの吸着原子の流れでステップの蛇行が起きるという点で、実験と理論および数値実験の結果は一致している。

5. ま と め

シリコン(001)微斜面を念頭において、ステップのバンチングと蛇行について調べた。透過性ステップと非透過性ステップという2種類の可能性があることを考慮しながら、拡散係数の異方性の違いまたはカイネティクス係数の違いを取り入れたモデルを検討した。

非透過性ステップで拡散係数の異方性がテラスごとに交代する場合、カイネティック係数が大きければ、ドリフト流の向きで広がるテラスの種類が変わるものの、流れの向きによらずバンチングが生じる。カイネティック係数が小さければ、下段向きドリフトでバンチングが生じ、初期の揺らぎがテラスの種類を決める。拡散係数の異方性が全くなくてカイネティック係数がステップごとに交代する場合のバンチングは、拡散係数が交代する場合でカイネティック係数が小さいときと同様である。

完全透過性ステップで拡散係数が交代する時のバンチングは、非透過性ステップでカイネティック係数が大きい時と同じである。カイネティック係数が大きい極限では、透過性ステップと非透過性ステップの差がなくなってしまいうので、この結果は妥当である。また、カイネティック係数が交代するだけではバンチングが生じない。これは結晶表面上どこでも平衡原子密度になっているからである。以上の結果をまとめると表1となる。

実験^{30,31)}では、電流の向きによらずバンチングが生じ、広がるテラスの種類は電流の向きにより決まる。したがって、拡散係数がテラスごとに交代することが本質的な役割を果たしており、ステップは透過性ステップだとみなして良いだろう。拡散係数の異方性の交代を取り入れると上段向きのドリフト流で透過性ステップの蛇行が生じることも実験³²⁾と一致している。

以上の結果から、シリコン(001)微斜面の不安定化に

表1 バンチングの起きる条件： D は拡散係数、 K はカイネティック係数、 $F>0$ は下段向きドリフト流、 $F<0$ は上段向きドリフト流を表す。 B は異方性がテラスの種類を決めるバンチング、 B_F は初期揺らぎがテラスの種類を決めるバンチング、 S は $T_A \geq T_B$ の安定状態

ステップ	異方性	$F>0$	$F<0$
非透過性	D (K が大きい)	B	B
	D (K が大きい)	B_F	S
	K	B_F	S
完全透過性	D	B	B
	K	S	S

についての定性的な理解はできたように思えるが、問題がないわけではない。1つは、バンチングの際の束の成長速度である。実験³¹⁾では、束に含まれるステップの数は時間の1/2乗で大きくなる。成長速度は電流の向きによらず等しいか、または電流が上段向きの場合のほうが若干速く成長するように見える。1次元ステップ流モデルでは、成長のべきは1/2に近い値が得られること³⁹⁾は実験と一致している。しかし、図2から分かるように、ドリフト流が上段向きの場合の成長速度は下段向きの場合に比べて小さく、その比は2つの拡散係数の比と同程度になっている。吸着原子の蒸発を考慮すると成長速度の差は小さくなる³⁹⁾が、それだけでは実験との違いは説明しきれない。図8のように、吸着原子の流れの向きにより2次元的な構造の違いが生じることが大切なかもしれないが、現段階でははっきりしたことは言えない。

ステップ間隔が狭いときのバンチングも説明できない。テラス間隔がある値以下では上段向きの電流でのみバンチングが生じることが Litvin ら³⁰⁾により観察されている。ここで紹介した結果の範囲内では、この実験結果に対応する条件は存在しない。Si(111)微斜面のバンチング²⁵⁾との類似性に着目すると、蒸発がある系での透過性ステップのバンチングとの対応で説明できるかもしれないが、これについても現段階では明らかではない。実験との対応については吸着原子の蒸発の効果なども含めてさらに詳細に研究をする必要がある。

謝辞

ここで紹介した研究の一部は、科学研究費補助金による援助のもとに行われたものである。

[文 献]

- 1) S. M. Bhattacharjee: Phys. Rev. Lett., **76** (1996) 4568.
- 2) M. Lässig: Phys. Rev. Lett., **77** (1996) 526.
- 3) V. B. Shenoy, S. Zhang and W. F. Saam: Phys. Rev. Lett., **81** (1998) 3475.
- 4) K. Sudoh, H. Iwasaki and E. D. Williams: Surf. Sci. Lett., **452** (2000) L287.
- 5) N. Akutsu, Y. Akutsu and T. Yamamoto: Surf. Sci., **493** (2001) 475.
- 6) N. Akutsu, Y. Akutsu and T. Yamamoto: Phys. Rev. B, **67** (2003) 125407.
- 7) A. V. Latyshev, A. L. Aseev, A. B. Krasilnikov and S. I. Stenin: Surf. Sci., **213** (1989) 157.
- 8) Y. Homma, R. McClelland and H. Hinibo: Jpn. J. Appl. Phys., **29** (1990) L2254.
- 9) M. Degawa, H. Nishimura, Y. Tanishiro, H. Minoda and K. Yagi: Jpn. J. Appl. Phys., **38** (1999) L308.
- 10) Y. Homma and N. Aizawa: Phys. Rev. B, **62** (2000) 8323.
- 11) M. Degawa, H. Minoda, Y. Tanishiro and K. Yagi: J. Phys. Soc. Jpn., **70** (2001) 1026.
- 12) M. Degawa, K. Thürmer, I. Morisima, H. Minoda, K. Yagi and E. D. Williams: Surf. Sci., **487** (2001) 171.
- 13) H. Minoda: J. Phys. Soc. Jpn., **71** (2002) 2944.
- 14) S. Stoyanov: Jpn. J. Appl. Phys., **30** (1991) 1.
- 15) A. Natori: Jpn. J. Appl. Phys., **33** (1994) 3538.
- 16) C. Misbah and O. Perre-Louis: Phys. Rev. E, **53** (1996) R4318.
- 17) M. Sato and M. Uwaha: J. Phys. Soc. Jpn., **65** (1996) 1515.
- 18) M. Sato and M. Uwaha: J. Phys. Soc. Jpn., **65** (1996) 2146.
- 19) D.-J. Liu and D. J. Weeks: Phys. Rev. B, **57** (1998) 14891.
- 20) S. Stoyanov and V. Tonchev: Phys. Rev. B, **58** (1998) 1590.
- 21) M. Sato and M. Uwaha: J. Phys. Soc. Jpn., **67** (1998) 3675.
- 22) S. Stoyanov: Surf. Sci., **416** (1998) 200.
- 23) J. M. Métois and S. Stoyanov: Surf. Sci., **440** (1999) 407.
- 24) M. Sato and M. Uwaha: Surf. Sci., **442** (1999) 318.
- 25) M. Sato, M. Uwaha and Y. Saito: Phys. Rev. B, **62** (2000) 8452.
- 26) N. Suga, J. Kimpara, N.-J. Wu, H. Yasunaga and A. Natori: Jpn. J. Appl. Phys., **39** (2000) 4412.
- 27) M. Sato, M. Uwaha and Y. Saito: Phys. Rev. B, **65** (2002) 245427.
- 28) D. Kandel and E. Kaxiras: Phys. Rev. Lett., **76** (1996) 1114.
- 29) M. Degawa, H. Minoda, Y. Tanishiro and K. Yagi: Surf. Sci., **461** (2000) L528.
- 30) L. V. Litvin, A. B. Krasilnikov and A. V. Latyshev: Surf. Sci., **244** (1991) L121.
- 31) A. V. Latyshev, L. V. Litvin and A. L. Aseev: Appl. Surf. Sci., **130** (1998) 139.
- 32) J.-F. Nielsen, M. S. Pettersen and J. P. Pelz: Surf. Sci., **480** (2001) 84.
- 33) S. Stoyanov: Jpn. J. Appl. Phys., **29** (1990) L659.
- 34) A. Natori, H. Fujimura and H. Yasunaga: Jpn. J. Appl. Phys., **31** (1992) 1164.
- 35) A. Natori, H. Fujimura and M. Fukuda: Appl. Surf. Sci., **60/61** (1992) 85.
- 36) M. Sato, M. Uwaha and Y. Saito: J. Cryst. Growth, **237-239** (2002) 43.
- 37) M. Sato, M. Uwaha, Y. Saito and Y. Hirose: Phys. Rev. B, **67** (2003) 125408.
- 38) M. Sato, M. Uwaha, T. Mori and Y. Hirose: submitted to J. Phys. Soc. Jpn.
- 39) M. Sato, T. Mori, M. Uwaha and Y. Hirose: in preparation.
- 40) M. Ozdemir and A. Zangwill: Phys. Rev. B, **45** (1992) 3718.
- 41) N. C. Bartelt, R. M. Tromp and E. D. Williams: Phys. Rev. Lett., **73** (1994) 1656.
- 42) N. Akutsu and Y. Akutsu: Surf. Sci., **376** (1997) 92.
- 43) N. Akutsu and Y. Akutsu: Phys. Rev., B **57** (1998) R4233.
- 44) O. Pierre-Louis, C. Misbah, Y. Saito, J. Krug and P. Politi: Phys. Rev. Lett., **80** (1998) 4221.
- 45) F. Gillet, O. Pierre-Louis and C. Misbah: Eur. Phys. J., B **18** (2000) 519.
- 46) S. Paulin, F. Gillet, O. Pierre-Louis and C. Misbah: Phys. Rev. Lett., **86** (2001) 5538.
- 47) M. Ichikawa and T. Doi: Appl. Phys. Lett., **60** (1992) 1082.
- 48) J.-J. Métois, J.-C. Heyraud and A. Pimpinelli: Surf. Sci., **420** (1999) 250.