

Title	シリコン表面における原子ステップの挙動に関する研究
Author(s)	須藤, 孝一
Citation	大阪大学, 1999, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3155359
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

シリコン表面における
原子ステップの挙動に関する研究

1998年

須藤 孝一

目次

第1章	序論	1
	1-1 緒言	1
	1-2 結晶表面の原子ステップに関する研究	2
	1-3 本研究の目的と論文の構成	3
	参考文献	5
第2章	表面および原子ステップの熱力学・統計力学理論	6
	2-1 緒言	6
	2-2 表面の熱力学	6
	2-2-1 表面張力	6
	2-2-2 結晶の平衡形	8
	2-2-3 ファセッティング	9
	2-3 ステップの揺らぎ	13
	2-3-1 連続体モデル	13
	2-3-2 微視的モデル	16
	2-4 まとめ	18
	参考文献	19
第3章	微視的表面モデルによる微斜面のシミュレーション	21
	3-1 緒言	21
	3-2 モデルおよびモンテカルロシミュレーション	22
	3-3 結果と考察	24
	3-4 まとめ	30
	参考文献	31
第4章	STMによるSi(113)表面のファセッティングの観察	32
	4-1 緒言	32
	4-2 Si(113)表面	32
	4-3 実験	35
	4-4 実験結果と考察	36
	4-4-1 表面形状の温度依存性	36
	4-4-2 ファセッティング温度	37
	4-4-3 テラス幅のアニール時間依存性	41
	4-4-4 通電の影響	43
	4-5 まとめ	45
	参考文献	46

第5章	Si(113)表面におけるステップの揺らぎ	48
5-1	緒言	48
5-2	実験	48
5-3	実験結果	49
	5-3-1 ステップ端の構造	49
	5-3-2 ステップスティフネスのバンチサイズ依存性	51
5-4	TSKモデルによる考察	54
5-5	まとめ	58
	参考文献	59
第6章	Si(113)表面におけるステップのキンクエネルギー	60
6-1	緒言	60
6-2	実験	61
6-3	実験結果	61
6-4	考察	65
	6-4-1 キンクハミルトニアンの評価	65
	6-4-2 ステップ張力の異方性	68
6-5	まとめ	70
	参考文献	71
第7章	総括	72
	謝辞	75
	業績リスト	76

第1章 序論

1-1 緒言

最近、ナノメートルオーダーのゲート酸化膜厚を有するMOSFETやナノメートルオーダーの極微構造を持つ量子デバイス等の次世代半導体デバイスが広く研究されている。こうした次世代デバイスの実現に向けては、ナノメートルオーダーの精度で表面界面形状を制御したり極微構造を形成する半導体プロセス技術確立することが必要不可欠であり、走査プローブ顕微鏡（SPM）を用いた微細加工、自己組織化現象の利用、高分子を利用した分子素子等、全く新しい手法やアイデアが提案され研究されている。こうした新規なアプローチが将来の半導体デバイスの実現に向けて有効であるかどうかは未だ不明確であるが、ナノメートルからサブミクロンのスケールで表面・界面の形状を制御する技術、およびその背後にある表面・界面現象の実験的・理論的な解明は工学的に極めて重要である。

結晶表面を光学顕微鏡で観察すればその表面は非常に平坦であるが、原子スケールで見れば必ず原子の凹凸が存在する。ここで、光学顕微鏡で見えるマクロスコピックスケールと原子スケールの中間くらいという意味で「メゾスコピックスケール」という言葉を用いるとすれば、このメゾスコピックスケールでは個々の原子は見えないが、原子層間の段差、すなわち原子ステップは依然として見ることができる。この様に、結晶表面の様相は観察するスケールに依存して変化する。表1-1に、観察するスケールと観察される結晶表面の形態についてまとめる。表面・界面の構造制御技術はメゾスコピックスケールで観察される表面現象と密接に関連していることから、本論文では、特にメゾスコピックスケールでの表面構造に着目する。メゾスコピックスケールは、個々の原子の振る舞いから理解するには系が大き過ぎてその取扱いが実験的にも理論的にも困難である。そこで、ふつうメゾスコピックスケールにおける表面構造を理解するために、結晶表面を原子ステップだけが認識できる程度に粗視化し、原子ステップと平坦なテラスによって表面形状を記述するアプローチが用いられている。これまでの研究で、実際にファセッティングや結晶成長等の表面現象が、原子ステップを単位とした熱力学・統計力学理論によってうまく説明されている[1,2]。そこで、結晶表面の原子ステップの性質を明らかにし、ステップの挙動を決定している物理量を実験的に評価することは重要である。最近では、化学エッチング等の実用的な表面プロセスについても原子ステップの挙動に基づいた議論がなされており、原子ステップを単位とした表面現象の取扱いの実用的な意義

も示されつつある[3]。また、様々な表面プロセスにおいて形成される表面構造を原子ステップの挙動から体系的に理解できれば、半導体プロセス技術の発展に広く寄与することが期待される。

表1.1 観察するスケールと観察される表面の形状

	マクロスコピック	スケール メゾスコピック	原子スケール
観察される 表面形状	平坦な面	原子ステップ ステップバンチ ファセット	欠陥、吸着原子 表面再構成 ステップ、キンク
関係する物理量	表面張力	ステップ張力 ステップスティフネス ステップ間の相互作用	原子間の結合エネルギー ステップエネルギー キンクエネルギー

1-2 結晶表面の原子ステップに関する研究

結晶のとり形態は、結晶と環境相が熱力学的な平衡状態にあって大きくも小さくもならない安定な形（平衡形）と結晶成長時に見られる結晶の形（成長形）に大きく分類される。結晶の平衡形については、Gibbsによって指摘されているように全体積を一定として全表面自由エネルギーの極小条件によって決まり、有名なWulffの幾何学的作図によって知ることができる[4]。もし、表面自由エネルギーに異方性がなければ全表面積が最小になる球形が安定な形になるが、結晶の場合、表面自由エネルギーが面方位に依存して変化するため、様々な形が平衡形として実現される。結晶の平衡形を支配している表面自由エネルギーの異方性は、原子間の結合の異方性に由来しているため、ミクロスコピックな観点からの考察が必要となる。有限温度での表面自由エネルギーの異方性を求めるためには、表面形状のエントロピーを計算しなければならないが、一般にこれは極めて困難である。しかし、微斜面と呼ばれる原子ステップと平坦なテラスが周期的に配列した階段状の表面では、主にステップの揺らぎによるエントロピーへの寄与が支配的であり、原子レベルの構造を粗視化して原子ステップを最小単位として表面形状を記述するTSK(Terrace-step-kink)モデルに基づいて表面張力の計算が行われるようになった[5]。このTSK描像に基づいた解析によって、表面張力の異方性に対する理解は急速に深まり、同時に実験的に

ステップの揺らぎの性質を調べる動機を与えた。

近年の表面観察技術の著しい発達によって、結晶表面の原子ステップを直接観察することが可能となり、ステップを単位とした理論が実験的に検証されつつある。現在、原子ステップの研究に用いられている表面観察技術としては、走査型トンネル顕微鏡 (STM:Scanning Tunneling Microscope)、原子間力顕微鏡 (AFM:Atomic Force Microscope)、反射型電子顕微鏡 (REM:Reflection Electron Microscope)、走査型反射電子顕微鏡 (SREM:Scanning Reflection Electron Microscope)、走査型電子顕微鏡 (SEM:Scanning Electron Microscope)、低速電子顕微鏡 (LEEM:Low Energy Electron Microscope) が挙げられる。REM[6-8]とLEEM[9,10]は、原子レベルの高い空間分解能は得られないものの、原子ステップを高いコントラストで観察することが可能である。さらに、高温下での原子ステップの運動をその場観察することが可能であることから、原子ステップの研究手法として広く用いられている。一方、STM[11]では、原子レベルの高い空間分解能が得られ、原子レベルでのステップの挙動を調べるのに有効である[12-14]。最近では、高温観察も可能となり、ステップの研究手法としての応用範囲は広い。また、低速電子線回折 (LEED:Low Energy Electron Diffraction) [15,16]、X線散乱[17]、光散乱[18]等の回折技術も依然として、表面ラフネスやステップの揺らぎを調べる手法として重要である。これらの技術を用いる利点としては、表面上の広い領域にわたった平均情報が得られることや、高温下や様々な表面プロセス下でのその場観察が比較的容易に行える点が挙げられる。

1-3 本研究の目的と論文の構成

シリコンは、半導体材料として工学的に最も重要であり、その物性については広く研究されている。本研究では、メゾスコピックスケールのシリコン結晶表面の構造の理解およびその制御を目的として、シリコン表面の原子ステップの挙動をSTMを用いて調べる。これまで、Si(001)およびSi(111)表面におけるステップの性質に関しては詳しく調べられており、ステップを単位とした理論の有効性についても示されつつある[2,8,10,12-14]。本研究では、ステップ間に引力的な相互作用が働くことが知られているSi(113)表面[19-21]上のステップの振る舞いに着目し、ステップを単位とした理論を用いた解析を行いその定性的且つ定量的な理解を目指す。

本論文の構成は以下の通りである。

第2章では、結晶表面の熱力学・統計力学理論について概説する。まず、結晶の平衡形やファセッティングといった問題が表面張力の異方性によって理解できることを示す。さらに、マクロスコピックな結晶の形態を支配する異方的表面張力を理

解するうえで、原子ステップの性質が重要であることを示す。原子ステップを単位とした表面モデルを紹介し、原子ステップの熱力学的性質について述べる。

第3章では、SOS (solid-on-solid) モデルと呼ばれるミクロスコピックなモデルを用いて微斜面のモンテカルロシミュレーションを行い、表面構造を粗視化した自由フェルミオンモデルおよびTSKモデルにおける結果と比較する。

第4章では、Si(113)表面のファセティング転移およびファセティングのダイナミクスについて、表面形状のSTM観察の結果に基づいて議論する。

第5章では、Si(113)表面上において共存する様々なサイズのステップバンチの揺らぎの様子をSTMで観察し、ステップバンチのサイズとステップスティフネスの関係について調べる。また、Si(113)表面上のステップにおいて存在する短距離の引力的ステップ間相互作用を考慮したTSKモデルに基づいた考察を行い、実験結果を定性的に理解する。

第6章では、微視的な観点からSi(113)表面のステップの揺らぎについて議論する。ステップの高分解STM像を用いてキंकの長さの分布を実験的に測定し、TSKモデルから期待される分布と比較することでキंकハミルトニアンに関する情報を引き出す。

最後に、本論文を総括し、将来的な展望について述べる。

参考文献

- [1] W. K. Burton, N. Cabrera, and F. C. Frank, *Philos. Trans. R. Soc. London A* 243, 299 (1951).
- [2] E. D. Williams, *Surf. Sci.* 299/300, 502 (1994).
- [3] Y. Huang, J. Flidr, T. A. Newton, and M. A. Hines, *Phys. Rev. Lett.* 80, 4462 (1998).
- [4] G. Wulff, *Z. Kristallogr. Miner.* 34, 449 (1901).
- [5] E. E. Gruber and W. W. Mullins, *J. Phys. Chem. Solids* 28, 6549 (1967).
- [6] N. Osakabe, Y. Tanishiro, K. Yagi and G. Honjo, *Surf. Sci.* 102, 424 (1981).
- [7] A. V. Latyshev, A. L. Aseev, A. B. Krasilnikov and S. I. Stenin, *Surf. Sci.* 213, 157 (1989).
- [8] C. Alfonso, J. M. Bermond, J. C. Heyraud, and J. J. Metois, *Surf. Sci.* 262, 371 (1992).
- [9] R. M. Tromp and M. C. Reuter, *Ultramicroscopy* 50, 171 (1993).
- [10] N. C. Bartelt, R. M. Tromp, and E. D. Williams, *Phys. Rev. Lett.* 73, 1656 (1994).
- [11] G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber and E. Weibel, *Phys. Rev. Lett.* 49, 57 (1982).
- [12] B. S. Swartzentruber, Y. -W. Mo, R. Kariotis, M. G. Lagally, and M. B. Webb, *Phys. Rev. Lett.* 65, 1913 (1990).
- [13] H. J. W. Zandvliet, H. B. Elswijk, E. J. van Loenen and D. Dijkkamp, *Phys. Rev.* B45, 5965 (1992).
- [14] X.-S. Wang, J. L. Goldberg, N. C. Bartelt, T. L. Einstein and E. D. Williams, *Phys. Rev. Lett.* 65, 2430 (1990).
- [15] C. S. Lent and P. I. Cohen, *Surf. Sci.* 139, 121 (1984).
- [16] N. C. Bartelt, T. L. Einstein and E. D. Williams, *Surf. Sci.* 244, 149 (1991).
- [17] D. Y. Noh, K. I. Blum, M. J. Ramstad and R. J. Birgeneau, *Phys. Rev.* B44, 10969 (1992).
- [18] 松川真治, 大阪大学工学研究科応用物理学専攻 修士論文 (1997).
- [19] S. Song and S. G. J. Mochrie, *Phys. Rev. Lett.* 73, 995 (1994).
- [20] S. Song and S. G. J. Mochrie, *Phys. Rev.* B51, 10068 (1995).
- [21] S. Song, M. Yoon and S. G. J. Mochrie, *Surf. Sci.* 334, 154 (1995).

第2章 表面および原子ステップの熱力学・統計力学理論

2-1 緒言

本章では、まず熱平衡状態における表面・界面の熱力学統計力学理論について概説する。表面・界面の形状を議論する場合に表面張力が基本的な役割を果たすことを示し、結晶の平衡形やファセッティングが表面張力の異方性によって理解できることを示す。表面張力の異方性を理解するためには、微視的な統計力学の議論が必要となるが、この場合、原子を単位とした微視的モデルを用いて有限温度での表面張力を導出するのは困難である。そこで、表面張力の異方性に関する本質的な理解を得るため、原子ステップのみが認識できる程度に粗視化を行い原子ステップを単位としたモデルによる解析が広く行われている。ステップを単位とした理論的取扱いは、STM等で観察されるメゾスコピックスケールでの表面形状を理解するのに非常に有効である。本章では、その理論的枠組みについて述べ、その中で基本的な役割を果たす物理量を明確にし、その実験的な評価法についても述べる。評価法の具体的な適用は、第4章以降で示される。

2-2 表面の熱力学

2-2-1 表面張力

本節では、表面・界面の熱力学的な性質が基本的には表面張力によって特徴づけられることを示す。表面（界面）とは、異なる相の間を仕切る境界面のことである。図2-1の様に同一の純粋な物質の異なる二つの相、相1と相2が共存している場合、すなわち二相平衡にある一成分系を考える。界面が存在することによるエネルギーの増加は界面の面積 A に比例するので、界面の面積を dA だけ変化させるのに要する仕事量 dR は、

$$dR = \gamma dA \quad (2-1)$$

であり、ここで係数 γ は表面張力と呼ばれる。従って界面の効果を考慮すれば、全系のエネルギー及びその全微分は、

$$E = TS - PV + \mu N + \gamma A \quad (2-2)$$

$$dE = TdS - PdV + \mu dN + \gamma dA \quad (2-3)$$

で与えられる。式(2-2)で表わされる全系のエネルギーを、相1および相2の温度、

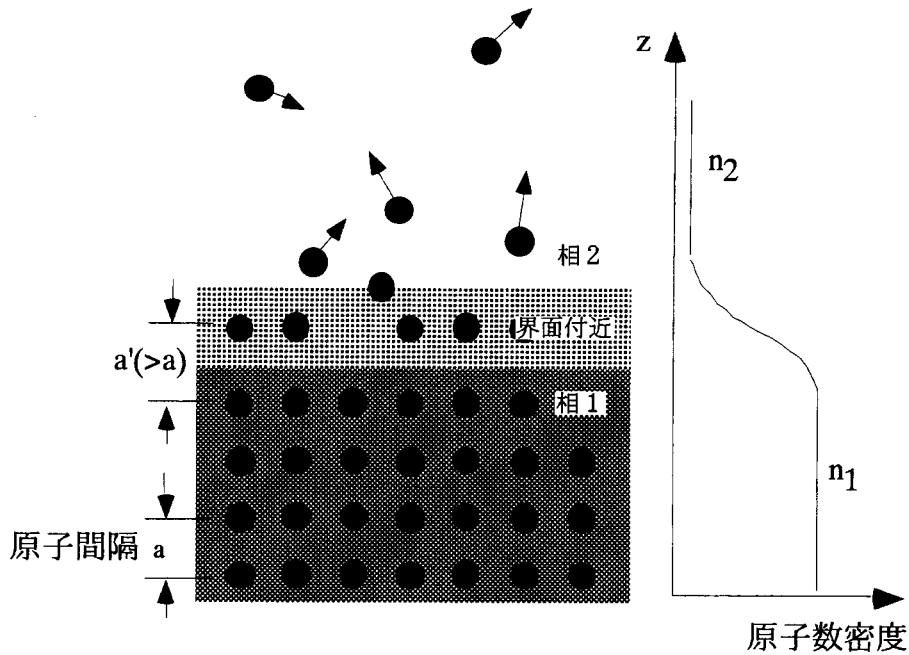


図2-1 固相（相1）と気相（相2）の界面の模式図。右図は粒子密度の変化を示す。

エントロピー、圧力、体積、化学ポテンシャル、粒子数： $T_1, S_1, P_1, V_1, \mu_1, N_1$ ； $T_2, S_2, P_2, V_2, \mu_2, N_2$ と示量変数についての界面部分の寄与 S_s, V_s, N_s を用いて表わすことを考える。ここで、 S_s, V_s, N_s はこれらの物理量の界面過剰と呼ばれる。相1と相2が相平衡にあるとき、両相の温度、圧力、化学ポテンシャルは等しいので、 $T_1 = T_2, P_1 = P_2, \mu_1 = \mu_2$ である。一方、粒子の密度 n は相1と相2でその値が異なり、界面付近で急峻に変化している。界面近傍での状態変数の変化の様子はよく分からないので、界面の決め方には任意性がある。そこで、 $V_s = 0$ として、相1と相2を単純に平面で分割することを考える。従って、全系の体積 V は、それぞれの相の体積 V_1 と V_2 の和として、

$$V = V_1 + V_2 \quad (2-4)$$

で表わされる。一方、全粒子数 N については、相1と相2の粒子の密度 n_1 と n_2 を用いて、

$$N = N_1 + N_2 + N_s = n_1 V_1 + n_2 V_2 + N_s \quad (2-5)$$

と表わされる。この時、粒子数の界面過剰 N_s は一般には零にならない。

以上の事を前提とすると、全系のエネルギーは、

$$E = E_1 + E_2 + E_s \quad (2-6)$$

$= T(S_1 + S_2 + S_s) - P(V_1 + V_2) + \mu(N_1 + N_2 + N_s) + \gamma A$
と書ける。従って、エネルギーの界面過剰 $E_s = E - E_1 - E_2$ とその全微分は、

$$E_s = TS_s + \mu N_s + \gamma A \quad (2-7)$$

$$dE_s = TdS_s + \mu dN_s + \gamma dA \quad (2-8)$$

となる。式(2-7)と式(2-8)より、ヘルムホルツの自由エネルギーとその全微分は、

$$F_s = \mu N_s + \gamma A \quad (2-9)$$

$$dF_s = \mu dN_s + \gamma dA \quad (2-10)$$

となる。ここで、さらに $N_s = 0$ となるように界面を定義しておけば、式(2-9)および式(2-10)は、

$$F_s = \gamma A \quad (2-11)$$

$$dF_s = \gamma dA \quad (2-12)$$

となる。以上の議論から、界面の定義において粒子数と体積の界面過剰を $N_s = 0$, $V_s = 0$ としておけば、界面の熱力学的な性質は、表面張力のみによって特徴づけられることになる。

2-2-2 結晶の平衡形

結晶の表面張力に関して最も特徴的なことは、液体の場合と異なり表面張力に異方性があることである。結晶の表面が様々な複雑な形状をとることは、まさにこの事実由来する。結晶表面の形状が $z = z(x, y)$ で表わされる時、表面張力 γ の異方性を考慮すれば全表面自由エネルギーは、

$$\begin{aligned} F &= \int \gamma(\rho) \sqrt{1 + \rho_x^2 + \rho_y^2} dx dy \\ &= \int f(\rho) dx dy \end{aligned} \quad (2-13)$$

で与えられる。ここで、 ρ は表面の方位であり、

$$\rho = \left(\frac{\partial z}{\partial x}, \frac{\partial z}{\partial y} \right) \quad (2-14)$$

で表わされる。また $f(\rho)$ は、基準面 ($\rho = 0$) に射影した単位面積あたりの表面自由エネルギーである。結晶の平衡形は、体積を一定として $F = \text{最小}$ という条件によって決まる。Wulff は、異方的表面張力 $\gamma(\rho)$ から平衡形を求める定理 (Wulff の定理) を示した [1,2]。また、平衡形は以下で述べる Wulff の作図と呼ばれる幾何学的作図 (図 2-2) によって知ることが出来る。まず、表面張力 γ を極座標でプロットする。原点 (Wulff 点) から γ プロットの各点に向けてベクトルをとり、それに垂直な平面を描く。すると、それらの平面に内接する包絡面が平衡形となる。 γ プロットは、通常特定の低指数面 (特異面) においてカスプ状の極小値をとる。このような場合に、Wulff の作図を行うと、平衡形は γ プロットにおけるカスプの方位に対応する平面で囲まれた多面体となる。

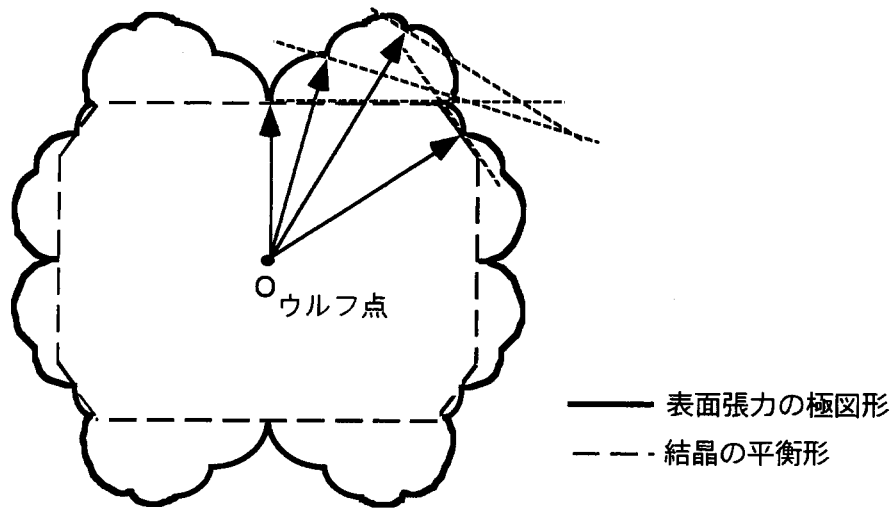


図2-2 ウルフの作図.

また、単位射影面積当たりの表面自由エネルギー $f(\rho)$ を Legendre 変換によって変数を ρ から η に変換すると、

$$\tilde{f}(\eta) = \min_{\rho} [f(\rho) - \eta \cdot \rho] \quad (2-15)$$

$$\eta = \frac{\partial f}{\partial \rho} \quad (2-16)$$

となり、ここで $\tilde{f}(\eta)$ は Andreev 自由エネルギーと呼ばれる。また、面の傾き ρ の共役変数として導入された η は、面の傾きを誘導する外場と考えることができる。この Andreev 自由エネルギーを用いれば、結晶の平衡形は

$$\lambda z(x, y) = \tilde{f}(-\lambda x, -\lambda y) \quad (2-17)$$

によって求められる[3]。この表式は、数学的に平衡形を求める場合によく用いられている。

2-2-3 ファセッティング

ファセッティングとは、図2-3に示した様に、巨視的に平坦な結晶表面が消失し、方位の異なる面によって表面が覆われる現象である。ファセッティングは、Ag表面やSi表面等の様々な系において観察されている[4-7]。全表面積はファセッティングが起こることによって増加するにもかかわらずファセッティングが引き起こされるのは、表面張力の異方性による。ファセッティングに関する熱力学的な基本的理解は、Herring[8]によって与えられた。Herringの理論を基礎として、Williamsら[9]はファ

セッティングを一種の相分離現象ととらえ、ファセッティングが起こる物理的機構を示した。本節では、HerringおよびWilliamsらによって展開されたファセッティングの理論を紹介する。

基準面から測って角度 ϕ_0 だけ傾いた様な表面を考える（図2-3参照）。この表面が異なる角度 ϕ_a と ϕ_b の表面に分離する条件は、

$$A_0 \sin \phi_0 = A_a \sin \phi_a + A_b \sin \phi_b \quad (2-18)$$

$$A_0 \gamma(\rho_0) > A_a \gamma(\rho_a) + A_b \gamma(\rho_b) \quad (2-19)$$

である。ここで、 $\rho = \tan \phi$ である。式(2-18)は、全体として表面の方位が保存することを、式(2-19)はファセッティングが起きた時、全表面自由エネルギーが低くなることを要請している。式(2-18)と(2-19)の条件は、基準面に射影した面積 $A' = A \cos \phi$ および基準面に射影したときの単位面積あたりの表面自由エネルギー $f(\rho) = \gamma(\rho) / \cos \phi$ を用いて、

$$(A'_a + A'_b) \rho_0 = A'_a \rho_a + A'_b \rho_b, \quad (2-20)$$

$$(A'_a + A'_b) f(\rho_0) > A'_a f(\rho_a) + A'_b f(\rho_b) \quad (2-21)$$

と書き直すことができる。式(2-20)を変形すると、

$$\frac{A'_b}{A'_a} = \frac{\rho_a - \rho_0}{\rho_0 - \rho_b} \quad (2-22)$$

となる。式(2-22)を用いると不等式(2-21)は、

$$\frac{f(\rho_0) - f(\rho_b)}{\rho_0 - \rho_b} > \frac{f(\rho_a) - f(\rho_0)}{\rho_a - \rho_0} \quad (2-23)$$

と書き直される。式(2-23)の条件を満足するには、 $f(\rho)$ が ρ_b と ρ_a の間で上に凸な領域がなければならない。図2-4の様に、 $f(\rho)$ が $\rho = \rho_b$ と $\rho = \rho_a$ で共通接線が引けると、 ρ_b と ρ_a の間の任意の表面は安定に存在できず、 $\rho = \rho_b$ と $\rho = \rho_a$ の面に分離する。

以上に示した様に、ファセッティングが起こるのは、基準面に射影した単位面積あたりの表面自由エネルギー $f(\rho)$ が上に凸な領域を持つ場合である。ここで、ファセッティングが起こる物理的な機構を理解するため、もう少し微視的な観点から議論する。基準面として、対称性の高い低指数面を考える。これは、厳密には絶対零度における表面張力を極座標プロットしたときのカスプの方位である。この基準面からわずかに面を傾けると、平坦な表面には1原子層の高さのステップが出現する。さらに面を傾けて行くとステップの密度が増加して、図2-5の様なステップとテラスから形成された表面となる。一般に、図2-5の様な特異面からわずかに傾斜した表面は微斜面 (vicinal surface) と呼ばれる。この様な表面の方位は、図2-5に示した様な極座標系において傾斜角 ϕ および方位角 θ によって指定される[10-12]。この時、

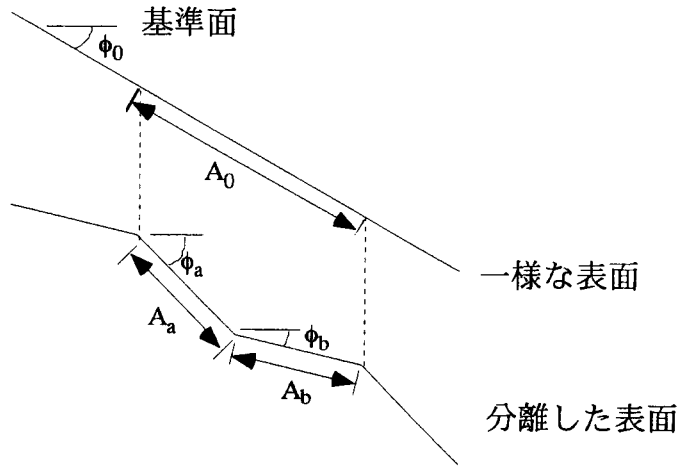


図2-3 ファセッティング転移.

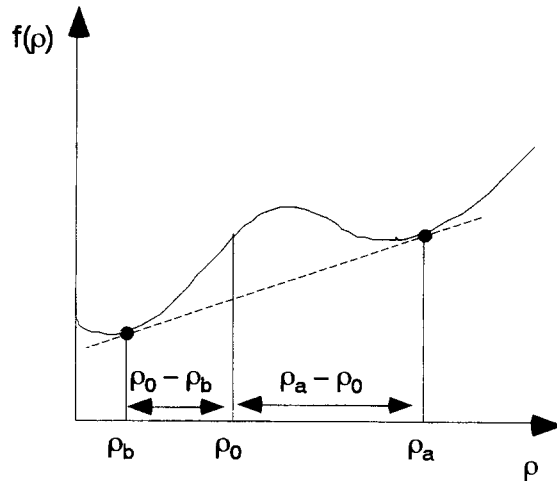


図2-4 射影単位面積あたりの表面自由エネルギー.

傾斜角 ϕ は、ステップ密度 ρ と

$$\rho = \frac{\tan \phi}{h}, \quad (2-24)$$

の関係にある。ここで、 h は1原子層のステップの高さである。ステップ密度が十分に小さい時（すなわち、テラス、ステップを基本的な構成要素として表面が記述できる場合）、基準面に射影した単位面積当たりの表面自由エネルギーは、 $|\tan \phi|$ の展開形として、

$$f(\phi, \theta, T) = \gamma^0(T) + \frac{\beta(\theta, T)}{h} |\tan \phi| + g(\theta, T) |\tan \phi|^3 \quad (2-25)$$

の様に表わされる[6,12,13]。第1項 $\gamma^0(T)$ は、テラス面 ($\phi = 0$) の表面張力である。

第2項における $\beta(\theta, T)$ は単位長さ当たりのステップ自由エネルギーであり、特異面上に単位長さのステップを1本作るのに要するエネルギーである。第3項は、ステップ間の距離を x として $U(x) \propto x^{-2}$ の様なステップ間相互作用がある場合に現われる項である。ステップ間にエネルギー的な相互作用がない場合でも、隣接するステップが交差できないことによるエントロピーに起因する反発的相互作用が存在し、この寄与が $|\tan \phi|^p$ の項として現われることが分かっている[14,15]。従って、式(2-25)において $|\tan \phi|$ の2次の項は現われない。また、ステップ間に $U(x) \propto x^{-n}$ において $n > 2$ である様な短距離の相互作用が働く場合、 $|\tan \phi|^4$ の項として寄与することが知られている[13]。式(2-25)において、 β は正である。従って、ステップ間の相互作用が反発的であれば、 g も正となり $f(\rho)$ は単調に増加し、ファセッティングは起きないことになる。ファセッティングが起きるためには、式(2-25)において $g < 0$ であるか、もしくは4次以下に負の係数を持つ項が現われなければならない。これは、ステップ間に引力的な相互作用が働いている場合に相当する。

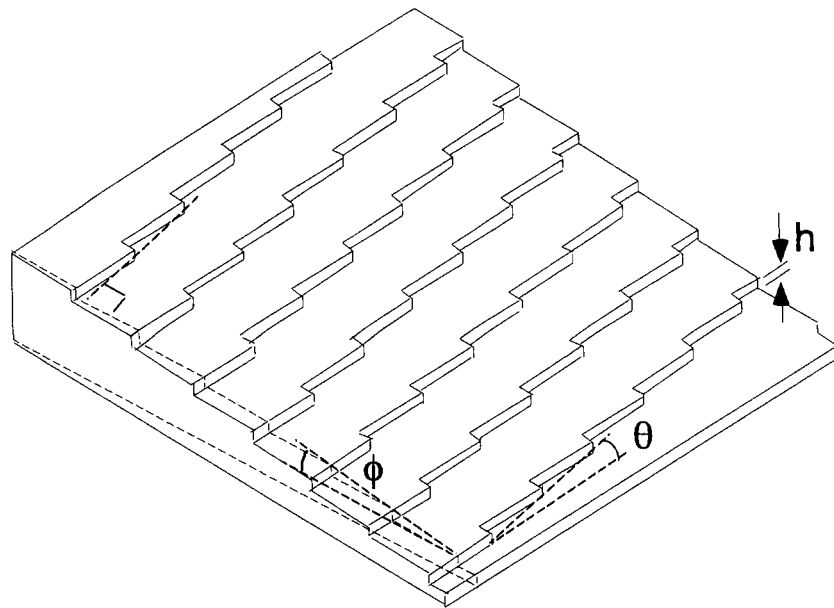


図2-5 微斜面の模式図.

一般にステップ間のエネルギー的な相互作用は斥力として働き、引力的な相互作用を引き起こす物理的機構はあまり知られていない。例えば、表面応力[16,17]やステップ端の双極子[18]に起因してステップ間相互作用が引き起こされることが知られている。表面応力が介在する場合には、常に反発的な相互作用となり、 $U(x) \propto x^{-2}$ の距離依存性をもつ。一方、双極子が介在する場合、相互作用の距離依存性は応力が介在する場合と同様 $U(x) \propto x^{-2}$ の形を持つが、反発的な相互作用と引力的相互作用のいずれもが引き起こされる可能性がある。実際に、Cu表面上のステップ間には引力的な相互作用が存在していることがSTMを用いた実験によって確認されている[19]。しかし、引力的相互作用の大きさが反発力に比べて十分に大きくないため、ファセッティングは起きない。実際にファセッティングを引き起こす物理的機構としては、ステップ間のエネルギー的な相互作用よりも表面再構成[6,9]や表面吸着の影響が知られている。表面再構成や表面吸着は、表面自由エネルギーの方位依存性 $f(\rho)$ の形を変化させる。この時、 $f(\rho)$ に上に凸の領域が実効的に作り出される場合にファセッティングが引き起こされる。また、例外として、Si(113)表面では、ステップ間の短距離で働く引力的相互作用によってファセッティングが誘導されるが知られている。この場合には、ステップにおいて原子の組みかえが起こることによって、隣接するステップの間に引力的相互作用が働くと考えられている。

2-3 ステップの揺らぎ

前節では、結晶の平衡形やファセッティングが表面張力の異方性によって理解できることを示した。微斜面と呼ばれる低指数面近傍の表面は、低指数面のテラスと1原子層の高さのステップによって構成される。この時、面方位の変化はステップ密度の変化に対応するので、低指数面に射影した単位面積あたりの自由エネルギー $f(\rho)$ を式(2-25)の様にステップ密度の展開形で表わすことにより、表面張力の異方性をステップの性質に基づいて議論することができる。本節では、ステップの熱平衡状態での振る舞いについて述べる。

2-3-1 連続体モデル

有限温度では、結晶表面のステップは空間的に揺らいでおり粗視化すれば、図2-6の様に1本の紐とみなすことができる。ステップが平均的に走る方向にy軸、テラス面内でそれと垂直にx軸をとれば、ステップの形は連続関数 $x(y)$ によって記述される。ステップは、2次元系における1次元界面とみなすことができるので、その性

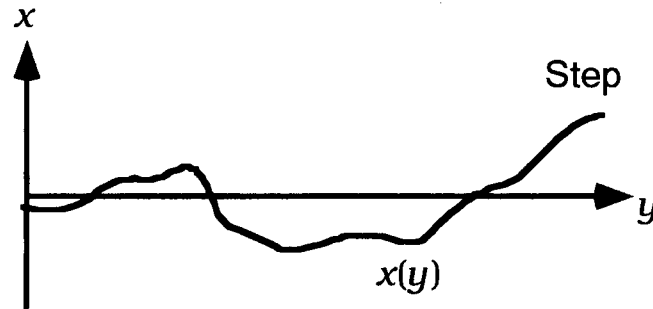


図2-6 ステップの揺らぎの連続体モデル。

質はステップ張力 β によって特徴づけられる。ステップ張力も表面張力同様異方性があり、結晶学的方位とステップが平均的に走る方位の間の角度を θ とすると、ステップ張力は θ の関数として $\beta(\theta)$ で表わされ、 $\theta = 0^\circ$ で $\beta(\theta)$ は極小値をとる。結晶軸方向 ($\theta = 0^\circ$) に走るまっすぐなステップが揺らぎによって $x(y)$ に変形した時のエネルギーの増加 ΔE は、

$$\Delta E = \int \left[\beta(\theta) \sqrt{1 + \left(\frac{\partial x}{\partial y}\right)^2} - \beta(0) \right] dy \quad (2-26)$$

$$\tan \theta = \frac{\partial x}{\partial y} \quad (2-27)$$

である。ここで、 θ の変化が小さいとして、 $\theta = 0$ のまわりで式(2-27)を展開すると、

$$\begin{aligned} \Delta E &= \int \left[\left(\beta(0) + \frac{1}{2} \beta''(0) \theta^2 \cdots \right) / \left(1 - \frac{1}{2} \theta^2 \cdots \right) - \beta(0) \right] dy \\ &= \frac{1}{2} (\beta(0) + \beta''(0)) \int \left(\frac{\partial x}{\partial y}\right)^2 dx \end{aligned} \quad (2-28)$$

となる。最初の展開において、 θ の 1 次の項が現われないのは、 $\beta(\theta)$ が $\theta = 0$ で極小となることを仮定したためである。また、第 2 式の係数：

$$\tilde{\beta}(0) = \beta(0) + \beta''(0) \quad (2-29)$$

はステップスティフネスと呼ばれる。ステップスティフネスはステップの曲げに対する固さを表わす物理量であり、ステップの揺らぎの大きさを決定する。ステップ

の揺らぎの性質を見るため、ステップ相関関数 $g(y)$ を

$$g(y) = \langle [x(y) - x(0)]^2 \rangle \quad (2-30)$$

で定義する。式(2-28)においてエネルギー等分配則を用いると、

$$\left\langle \left(\frac{\partial x}{\partial y} \right)^2 \right\rangle = \frac{kT}{\beta} \quad (2-32)$$

となる。従って、ステップ相関関数は、

$$g(y) = \left\langle \left[\int_0^y \frac{\partial x}{\partial y_1} dy_1 \right]^2 \right\rangle = \sigma^2 y = \frac{kT}{\beta} y \quad (2-33)$$

となり、距離 y に比例して増加する。ここで σ はスケールされたステップの揺らぎ幅である。以上の結論は、 $\theta = 0^\circ$ の方向に走るステップについて得られたものであるが、阿久津ら[20]は任意の方位に走るステップについても式(2-33)が成立することを証明している。REM、LEEM、STM等の表面観察技術を用いれば実験的に σ を測定することが可能であり、式(2-33)を用いてステップスティフネスの大きさを見積もることができる[21-23]。その実例は、第5章において示す。

微斜面の場合、有限密度でステップが存在するので、ステップ間の相互作用の影響を考慮しなければならない。結晶表面のステップ同士は交差することが出来ないため、ステップの揺らぎは隣接するステップとの衝突によって抑制される。この事は、単一ステップにおいて得られた式(2-33)の結果に変更を加える。ステップの衝突の効果は、ステップの揺らぎが平均テラス幅の1/2程度になると顕著になると考えられる。従って、ステップ相関関数 $g(y)$ にステップ同士の衝突効果が出始める目安の値として衝突距離 y_{coll} ：

$$y_{coll} = 1 / (4\rho^2\sigma^2) \quad (2-34)$$

が導入される。ステップ間のエネルギー的な相互作用がなく、ステップ密度が低い場合、微斜面の熱力学的性質は自由フェルミオンモデルで記述されることが知られている[24,25]。自由フェルミオンモデルに基づいた議論から、ステップ密度 ρ が小さい時、 $y \gg y_{coll}$ において $g(y)$ は、

$$g(y) = \frac{1}{\pi^2 \rho^2} \ln y \quad (2-35)$$

の様に対数的に振る舞うことが期待される[26,27]。式(2-35)は、温度や微視的なステップのパラメータに依存しておらず、微斜面の熱力学的な性質として期待されるユニバーサルな結論である。以上より、有限密度でステップが存在する微斜面では、 $y \ll y_{coll}$ ではステップは孤立しているとみなせるので、 $g(y)$ は式(2-33)の様に一次で増加し、 $y \gg y_{coll}$ ではステップ衝突の効果によってステップの揺らぎが抑制され、結果として $g(y)$ は発散性が弱められ対数的に振る舞うと考えられる。

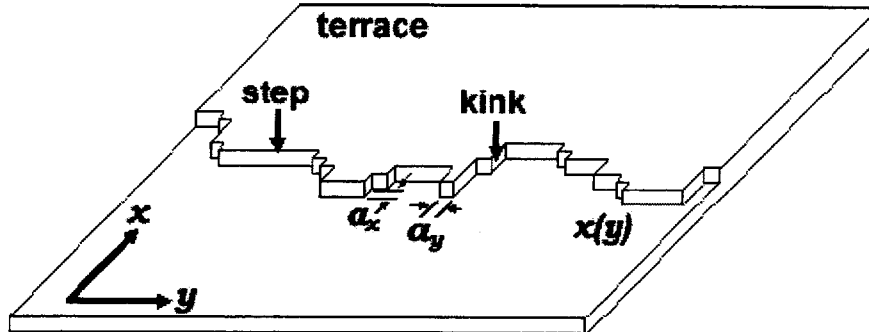


図2-7 TSK (terrace-step-kink) モデル.

2-3-2 微視的モデル

前節では、連続体モデルに基づいてステップの揺らぎについて議論した。ここでは、もう少し微視的な観点からステップの揺らぎについて議論する。比較的大きなスケールでステップを見た時、ステップは紐の様な連続体として扱うことが出来るが、紐の一点を原子と同程度のスケールまで拡大すると、ステップは図2-7の様な離散的な構造を持っている。ステップは、ステップ端にキンクと呼ばれる欠陥構造が励起されることによって揺らぐものと考えられる。微斜面の構造を単純化してテラス、ステップおよびキンクをその構成要素として記述するモデルをTSK (terrace-step-kink) モデルと呼ぶ。TSKモデルでは、ステップのオーバーハング構造、テラス上の空孔およびアイランド等の構造は無視される。この様な単純化は、ラフニング温度付近の荒れた表面を記述するには適さないが、ラフニング温度より十分に低い温度領域では十分に良い近似である。TSKモデルにおいてキンク間に相互作用がなければ平衡状態におけるステップの揺らぎは酔歩的である。従って、式(2-30)で定義したステップ相関関数 $g(y)$ は、

$$g(y) = \left\langle \left(\sum_{i=1}^{y/a_y} n_i \right)^2 \right\rangle = b^2 y / a_y \quad (2-36)$$

となり、連続体モデルの場合と同様一次で増加する。ここで、 $n_i = x(i) - x(i+1)$ 、 a_y

は格子定数である。また、係数 b^2 はdiffusivityと呼ばれる。長さ $|n|a_x$ のキンクを励起するのに必要なエネルギーを $E(|n|)$ とすると、diffusivityは、

$$b^2(T) = \frac{2a_x^2 \sum_{n=1}^{\infty} n^2 \exp(-E(n)/kT)}{1 + \sum_{n=1}^{\infty} \exp(-E(n)/kT)} \quad (2-37)$$

によって計算される。式(2-37)から分かるように b^2 はキンクハミルトニアン $E(n)$ の具体的な形に依存する。キンクができた時のエネルギーの増加が、単純にキンクの長さに比例するとして、 $E(n) = n\varepsilon$ を仮定すれば、 b^2 は

$$b^2 / a_x^2 = \frac{1}{2} \sinh^{-2}(\varepsilon / 2kT) \quad (2-38)$$

となる。式(2-33)の関係を用いれば、ステップスティフネスは温度の関数として、

$$\tilde{\beta}(T) = 2 \frac{a_y}{a_x^2} kT \sinh^2\left(\frac{\varepsilon}{2kT}\right) \quad (2-39)$$

と求められる。従って、ステップスティフネスは温度の上昇と共に減少する事が分かる。言い換えれば、温度の上昇と共にステップの揺らぎが増大し表面のラフネスが増大することになる。ここで注意すべき事は、式(2-38)および式(2-39)の結論は $E(n) = n\varepsilon$ の仮定の下で得られたものであり、一般的なものではない。異なる $E(n)$ を仮定すれば、diffusivityとステップスティフネスの温度依存性は変化する[28]。従って、結晶表面のステップの揺らぎの熱力学的性質を理解するには、TSKモデルを用いて議論する場合に前提となるキンクエネルギーの長さ依存性 $E(n)$ の評価が重要となる。キンクハミルトニアン $E(n)$ の具体的な形は、キンクの長さ $|n|$ の分布 $P(|n|)$ より実験的に評価することが出来る。励起された個々のキンクの長さが独立であるとすれば、キンクの長さの分布は単純にボルツマン分布に従うので、

$$P(|n|) = 2P(0) \exp(-E(|n|)/kT) \quad (2-40)$$

となる。ここで、 $P(0)$ は各キンクサイトにおいてキンクが励起されない確率である。係数の2は、ある長さのキンクについて、走る向きが逆方向のキンク ($n > 0$ と $n < 0$ に対応する) が同じ確率で励起されることに由来する。Swartzentruberら[29]は、実際にSTM像からキンクの長さの分布を測定し、Si(001)表面上のステップについてキンクハミルトニアン $E(n)$ を実験的に評価している。

また、Barteltら[28]はTSKモデルにおいても、有限のステップ密度を持つ微斜面のステップ相関関数 $g(y)$ が十分大きな y において、

$$g(y) = A \ln y \quad (2-41)$$

の様に対数的に増加することをモンテカルロシミュレーションを行って確認している。さらに阿久津ら[30]は、モンテカルロシミュレーションを行って、TSKモデルにおける係数 A のステップ密度 ρ 依存性を調べており、 $\rho \rightarrow 0$ の極限では自由フェルミ

オンモデルにおけるユニバーサルな値、すなわち $A=1/\pi^2\rho^2$ となることが期待されるが、有限のステップ密度においてはユニバーサルな値からずれて、ステップ密度の増加と共に係数 A が増加することを示している。

2-4 まとめ

本章では、第4章以降での実験結果の解析において基礎となる結晶表面形状に関する熱力学・統計力学の一般論について述べた。この中で、結晶の平衡形やファセティングといった表面物理現象が異方的表面張力によって理解できることを示した。また、表面張力の異方性の本質的な理解に、自由度としてステップの揺らぎのみを考慮した粗視化されたモデルに基づいた議論が有効であることを示し、ステップの熱力学的な性質について述べた。

参考文献

- [1] G. Wulff, *Z. Krist.* 34, 449 (1901).
- [2] 小林秋男, 小川岩雄, 富永五郎, 浜田達二, 横田伊佐秋 共訳, ランダウーリフ
シツツ統計物理学 下 (岩波書店, 1967).
- [3] A. F. Andreev, *Sov. Phys. JETP* 53, 1063 (1982).
- [4] J. S. Ozcomert, W. W. Pai, N. C. Bartelt and J. E. Reutt-Robey, *Phys. Rev. Lett.* 72,
258 (1993).
- [5] R. J. Phaneuf and E. D. Williams, *Phys. Rev. Lett.* 58, 2563 (1987).
- [6] E. D. Williams and N. C. Bartelt, *Science* 251, 393 (1991).
- [7] S. Song and S. G. J. Mochrie, *Phys. Rev. Lett.* 73, 995 (1994).
- [8] C. Herring, *Phys. Rev.* 82, 87 (1951).
- [9] E. D. Williams, R. J. Phaneuf, J. Wei, N. C. Bartelt and T. L. Einstein, *Surf. Sci.* 294,
219 (1994).
- [10] M. A. Van Hove and G. A. Somorjai, *Surf. Sci.* 92, 489 (1980).
- [11] D. R. Eisner and T. L. Einstein, *Surf. Sci. Lett.* 286, L559 (1993).
- [12] R. C. Nelson, T. L. Einstein and S. V. Khare, *Surf. Sci.* 295, 462 (1993).
- [13] C. Jayaprakash, C. Rottman and W. F. Saam, *Phys. Rev. B* 30, 6549 (1984).
- [14] M. E. Fisher, *J. Stat. Phys.* 34, 667 (1984).
- [15] M. E. Fisher and D. S. Fisher, *Phys. Rev. B* 25, 3192 (1982).
- [16] J. M. Blakely and R. L. Schwoebel, *Surf. Sci.* 26, 321 (1971).
- [17] V. I. Marchenko and A. Y. Parshin, *Sov. Phys. JETP* 52, 129 (1980).
- [18] A. C. Redfield and A. Zangwill, *Phys. Rev. B* 46, 4289 (1992).
- [19] J. Frohn, M. Giesen, M. Poensgen, J. F. Wolf and H. Ibach, *Phys. Rev. Lett.* 67, 3543
(1991).
- [20] Y. Akutsu and N. Akutsu, *J. Phys.* A19, 2813 (1986).
- [21] C. Alfonso, J. M. Bermond, J. C. Heyraud and J. J. Metois, *Surf. Sci.* 262, 371 (1992).
- [22] N. C. Bartelt, R. M. Tromp and E. D. Williams, *Phys. Rev. Lett.* 73, 1656 (1994).
- [23] W. W. Pai, N. C. Bartelt and J. E. Reutt-Robey, *Phys. Rev. B* 53, 15991 (1996).
- [24] P. -G. de Gennes, *J. Chem. Phys.* 48, 2257 (1968).
- [25] Y. Akutsu, N. Akutsu and T. Yamamoto, *Phys. Rev. Lett.* 61, 424 (1988).
- [26] W. F. Saam, *Phys. Rev. Lett.* 62, 2636 (1989).
- [27] T. Yamamoto, Y. Akutsu and N. Akutsu, *J. Phys. Soc. Jpn.* 63, 915 (1994).
- [28] N. C. Bartelt, T. L. Einstein and E. D. Williams, *Surf. Sci.* 276, 308 (1992).

- [29] B. S. Swartzentruber, Y. -W. Mo, R. Kariotis, M. G. Lagally and M. B. Webb, *Phys. Rev. Lett.* 65, 1913 (1990).
- [30] Y. Akutsu, N. Akutsu and T. Yamamoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* 63, 2032 (1994).

第3章 微視的表面モデルによる微斜面のシミュレーション

3-1 緒言

前章では、微斜面の熱力学的性質について、表面形状を粗視化した原子ステップを単位とした描像に基づいて議論した。本章では、この粗視化した表面モデルに基づいて得られた結論の一般性・妥当性をより明確にするため、表面形状を粗視化せず、SOS (solid-on-solid) モデルと呼ばれる原子一個を単位とした微視的モデルを用いて微斜面の熱力学的性質について議論する。図3-1は、SOSモデルのモンテカルロシミュレーションによって生成された表面の様子である。SOSモデルは原子一個を単位とした表面モデルであり、TSKモデルでは無視していたステップのオーバーハング構造、テラス上の空孔やアイランド等の構造を取り入れたより現実的なモデルである。ここでは、微視的なSOSモデルにおけるステップ相関関数をモンテカルロ計算によって求め、ステップを単位とした自由フェルミオンモデルおよびTSKモデルにおける結果と比較する。また、表面ラフネスを特徴づける高さ相関関数とステップ相関関数の関係についても議論する。

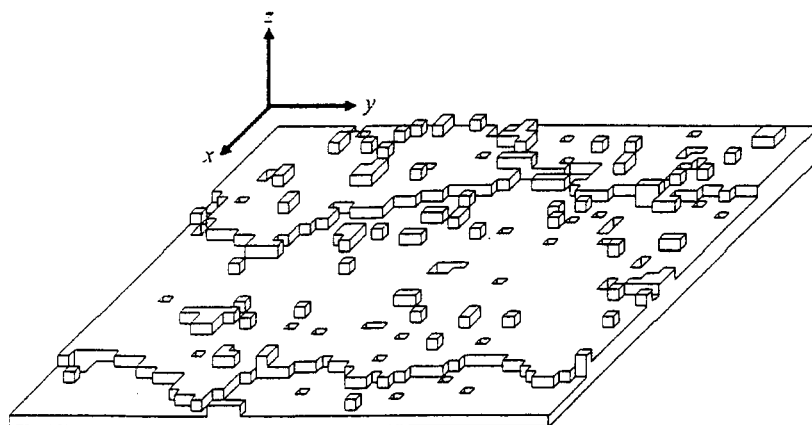


図3-1 SOS (solid-on-solid) モデルで記述される表面形状。

まず、微斜面を記述するため、以下の様な座標系を定義する (図3-1)。平均的にステップが走る方向に y -軸、テラス面内でそれと垂直な方向に x -軸をとる。この時、位置 (x,y) でのテラス面に対して垂直方向の表面の高さ $z(x,y)$ によって表面の形状を記述できる。表面の揺らぎの性質は、いわゆる高さ相関関数 $g_z(y)$ によって定量的に評価される。高さ相関関数は、平均表面からのずれ Δz を用いて、

$$\begin{aligned} g_z(x,y) &= \langle [\Delta z(x,y) - \Delta z(0,0)]^2 \rangle \\ &= \langle [z(x,y) - z(0,0) - \rho x]^2 \rangle \end{aligned} \quad (3-1)$$

で定義される。ここで、 ρ はステップ密度である。ラフな表面では、 $g_z(y)$ が対数的に発散することが知られており[1-3]、一般的に

$$g_z(y) = A_z \ln|y| \quad (3-2)$$

の様に振る舞うことが期待される。一方、一本のステップの形状は $x(y)$ で記述され、揺らぎの性質は前章で述べたようにステップ相関関数、

$$g(y) = \langle [x(y) - x(0)]^2 \rangle \quad (3-3)$$

によって特徴づけられる。ステップ相関関数 $g(y)$ についても、自由フェルミオンモデルおよびTSKモデルの解析から、

$$g(y) = A \ln|y| \quad (3-4)$$

のように対数的に発散することが期待される[4-6]。特に、自由フェルミオンモデルの場合には、係数 A がユニバーサルな値 $A = 1/\pi^2 \rho^2$ をとることが知られている。山本ら[5]は、ラフ表面の長波長揺らぎを記述する表面張力波モデル[2]とTSK描像に基づいて $g(x,y)$ と $g_z(x,y)$ の間の一般的な関係として、

$$g(y) = \frac{1}{\rho^2} g_z(y) \quad (\text{at large } |y|) \quad (3-5)$$

が成立することを示している。本章では、以上で述べた微斜面の熱力学的性質を、ASOS (absolute solid-on-solid)モデルのモンテカルロシミュレーションを行って検証する。

3-2 モデルおよびモンテカルロシミュレーション

ASOSモデル[7]やDG (discrete Gaussian) モデル[8]等の格子モデルは、単純立方格子の(001)面上のラフニング転移を記述するための表面モデルである。SOSモデルでは、図3-1に示したように、 x - y 面上の正方格子の格子点上に z 方向に原子が隙間なく積み重ねられており (すなわち、バルク中の欠陥や表面のオーバーハング構造は禁止される)、各格子点における表面原子の位置 $z(x,y)$ によって表面形状が記述される。格子定数を1とすれば、 x, y, z のとりうる値は整数に限定される。ASOSモデルのモデルハミルトニアンは、表面エネルギーが単純に原子の未結合手の総数に比例すると

考えて、

$$H = J \sum_{\langle ij \rangle} |z_i - z_j| \quad (3-6)$$

で与えられる。ここで、 J は結合定数であり、 $\langle ij \rangle$ は最近接格子点のペアを表わしている。ASOSモデルのラフニング転移に関しては以前にモンテカルロシミュレーションによって調べられており、ラフニング温度 T_R は $kT_R/J = 1.24$ である事が知られている[8]。

ASOSモデルのモンテカルロシミュレーションは以下の様にして行った。 $L \times L$ の格子に x 軸方向に傾いたステップ密度 ρ の微斜面を生成するため、 x -方向に境界条件 $z(x+L, y) = z(x, y) + \rho L$ を課す。また、 y -方向には自由境界条件を課す。今回、 y -方向に周期境界条件でなく自由境界条件を用いたのは、相関関数の漸近的な振る舞いが比較的小さなシミュレーションサイズにおいても確認されるためである。周期境界条件を用いると、相関関数は、 $g(y) = g(L - y)$ の性質を持つので、 $y = L/2$ 近傍で有限サイズ効果によって発散性が抑制される。従って、漸近的な振る舞いを見るには自由境界条件の場合と比べてより大きな L を用いた計算が必要となる。

高さ相関関数 $g_z(y)$ については、ただちに計算することが可能であるが、ステップ相関関数 $g(y)$ を計算するためには、ステップの定義を明確にしておく必要がある。SOSモデルではステップは必然的な存在ではないが、自然な定義として、高さ z の相と $z+1$ の相の相分離線（界面）をステップと定義する[9,10]。図3-1から分かるように、SOSモデルの場合、高さ z の相と $z+1$ の相の界面にはオーバーハング構造やテラス上の構造のために有限の幅が存在する。この局所的な幅は固有幅（intrinsic width）と呼ばれる。従って、ステップ相関関数を計算するには、何らかの規則を導入して一本のステップをTSKモデルのように一価関数 $x(y)$ で記述しなければならない。ステップの定義の仕方には任意性があるが、温度 T がラフニング温度 T_R 以下であれば、固有幅は有限であるのに対し[10]相関関数 $g(y)$ は y の増加と共に発散するので、 $g(y)$ の漸近的な振る舞いはステップの定義の仕方には依存しない。そこで、シミュレーションでは便宜上以下の手順でステップ端の位置を決定する。まず、各 y について $z(x+1, y) - z(x, y) \geq 1$ を満たす x を探す。もし、この条件を満足する x が1つだけなら、その x を y でのステップの位置とする。もし、複数の x においてこの条件が満足されるなら、それらの平均値を y でのステップの位置とする。もし、この条件を満たす x が存在しないとき、 $x(y)$ は $x(y-1)$ に等しいとする。この規則に従ってステップの揺らぎを1価関数 $x(y)$ で記述することにより、SOSモデルにおいてステップ相関関数が定義される。

3-3 結果と考察

今回行ったモンテカルロシミュレーションでは、 $L=200, kT/J=0.8$ とした。ステップ密度 $\rho=0.1$ および 0.2 の時のモンテカルロシミュレーションで生成された表面のスナップショットを図3-2に示す。また、 $\rho=0.1$ および 0.2 の時のステップ相関関数 $g(y)$ のモンテカルロ計算結果を図3-3に示す。計算では、最初の 10^6 MCS (Monte-Carlo sweeps)を捨て、 $1 \times 10^6 \sim 3 \times 10^6$ MCSでのモンテカルロ平均をとった。 $\rho=0.2$ の時

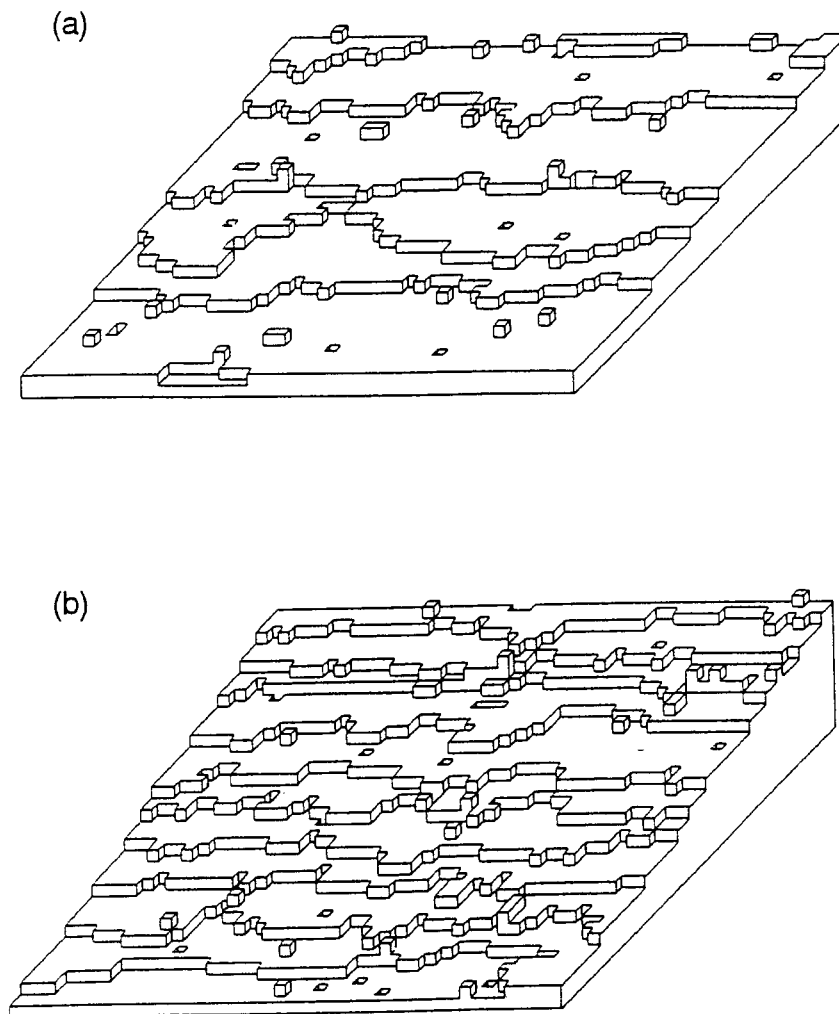


図3-2 ASOS (absolute solid-on-solid) モデルのモンテカルロシミュレーションによって生成された表面のスナップショット。(a) $\rho=0.1$, (b) $\rho=0.2$.

には、 $g(y)$ が対数的に増加していることが確認される。但し、自由境界条件を用いて計算したので、 $y = L/2$ 付近では、 $g(y)$ はエッジ効果のために大きな値をとっている。 $g(y)$ が対数的に増加している領域において係数 A を求めたところ、 $A = 4.38 \pm 0.08$ であった。一方、 $\rho = 0.1$ の場合、 $g(y)$ の対数的振る舞いを確認することができない。これは、式(2-34)で定義されるステップ同士の衝突距離 y_{coll} に比べてシミュレーションサイズが小さいためであると考えられる。図3-4に、 $\rho = 0.1$ および0.2の時の高さ相関関数 $g_z(y)$ のモンテカルロ計算結果を示す。高さ相関関数については、 $\rho = 0.1$ と0.2のいずれの場合にも、対数的に発散する様子が確認される。図3-4より係数 A_z を求めると、 $\rho = 0.1$ の時に $A_z = 0.135 \pm 0.002$ 、 $\rho = 0.2$ の時に $A_z = 0.175 \pm 0.003$ であった。 $\rho = 0.2$ の時、 $(A_z/A)^{1/2}$ がほぼ0.2となっていることから、式(3-5)の関係が満たされていることが分かる。

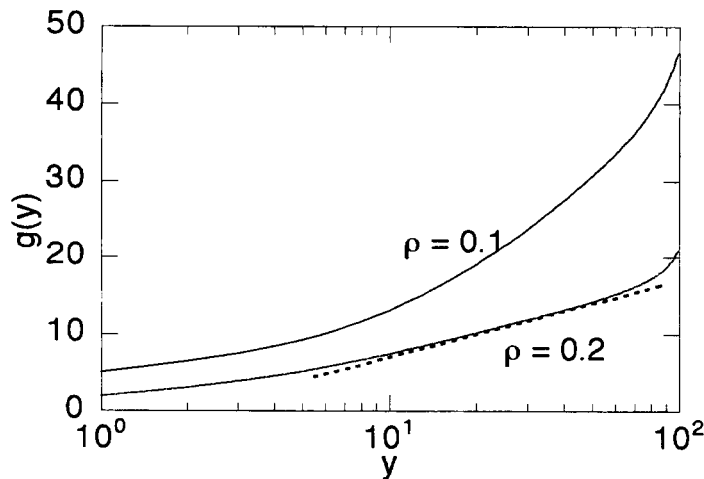


図3-3 ASOSモデルにおけるステップ相関関数のモンテカルロ計算結果。
点線は対数的な振る舞いが確認される部分を示す。

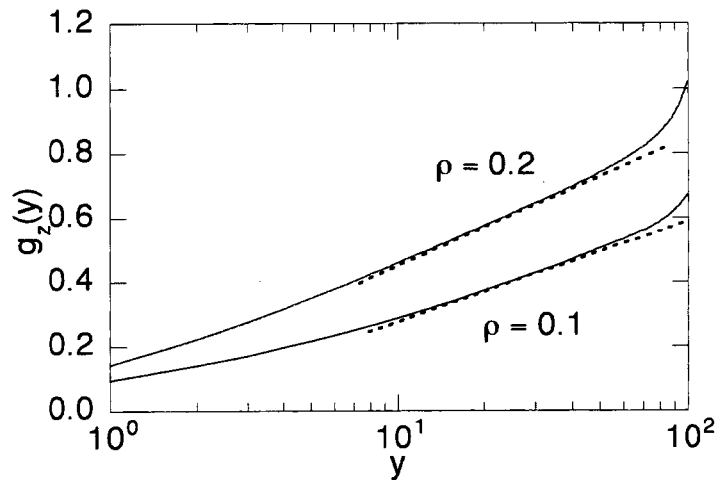


図3-4 ASOSモデルにおける高さ相関関数のモンテカルロ計算結果。
点線は対数的な振る舞いが確認される部分を示す。

さらに、ステップ密度が $\rho = 0.5$ の場合についてもモンテカルロシミュレーションを行った。図3-5に、モンテカルロシミュレーションによって生成されたステップ密度 $\rho = 0.5$ の表面を示す。この場合、テラス幅が非常に狭く、いたるところでステップ同士の衝突が起こり、2層や3層の段差を持った構造が高い頻度で形成されている。図3-5のような複雑な形状は、もはやTSK描像での近似が不適當になりつつあることを示唆する。しかし、このような場合でも、上で述べたステップの定義を用いれば、ステップ相関関数を計算することが出来る。 $\rho = 0.5$ の時のステップ相関関数 $g(y)$ の計算結果を図3-6に示す。 y が小さな所では、 $\rho = 0.1$ および $\rho = 0.2$ の時と比べると変化の様子が異なっているが、大きな y では対数的に発散しており、漸近的な振る舞いは同様であることが分かる。この場合の係数 A は、 1.14 ± 0.01 である。また、高さ相関関数 $g_z(y)$ も対数的に発散しており、係数 A_z は $A_z = 0.284 \pm 0.002$ であった。この場合も、 $(A_z/A)^{1/2}$ がほぼ0.5であることから、式(3-5)の関係が成立していることが確認される。以上の結果から、ステップ密度が高くなりTSK描像での記述が困難な表面についても、高さの異なる相の間の相分離曲線をステップとみなすことで、TSK描像に基づいた理論予測の適用が可能であることが分かる。

山本ら[5]によって示された式(3-5)の関係は、ステップの揺らぎを表面の揺らぎと関連づけるので重要である。そこで、この関係をよりはっきりと見るため、 $g_z(y) \cdot g(y)$ プロットを行った。図3-7に、 $\rho = 0.1, 0.2$ および 0.5 の時の $g(y)$ と $g_z(y)$ のモンテカルロ計算結果から得た $g_z(y) \cdot g(y)$ プロットを示す。大きな $g_z(y)$ すなわち大きな y に対して、このプロットは直線に乗っている。その傾きは、 $\rho = 0.1, 0.2$ および 0.5 の時、それぞれ

れ $99.0 \pm 0.5, 24.8 \pm 0.3, 4.00 \pm 0.02$ であり、式(3-5)の関係が成立していることがはっきりと分かる。また、興味深いことに、自由境界条件によるエッジ効果の影響が顕著な $y = L/2$ 付近においても、式(2-41)の関係が成立していることが分かる。この事は、式(3-5)の関係が平衡状態の微斜面における非常に一般的な関係であることを示唆している。

最後に、ASOSモデルにおいて得られた結果を自由フェルミオンモデルにおけるユニバーサルな振る舞いと比較する。表3-1にASOSモデルおよび自由フェルミオンモデル[5]における係数 A および A_2 の値をまとめる。この表から、ASOSモデルにおいて得られた係数は、いずれもユニバーサルな値より大きく、またステップ密度の増加と共にユニバーサルな値からのずれが増大して行くことが分かる。阿久津らが行ったTSKモデルについてのモンテカルロ計算結果も同様の傾向を示している[6]。しかし、ASOSモデルの方がユニバーサルな値からのずれが大きく、この事はTSKモデルで無視していた微視的な構造が影響しているものと考えられる。従って、係数 A および A_2 はモデルの詳細に依存しており、言い換えると系の微視的な性質についての情報が含まれていると考えられている。

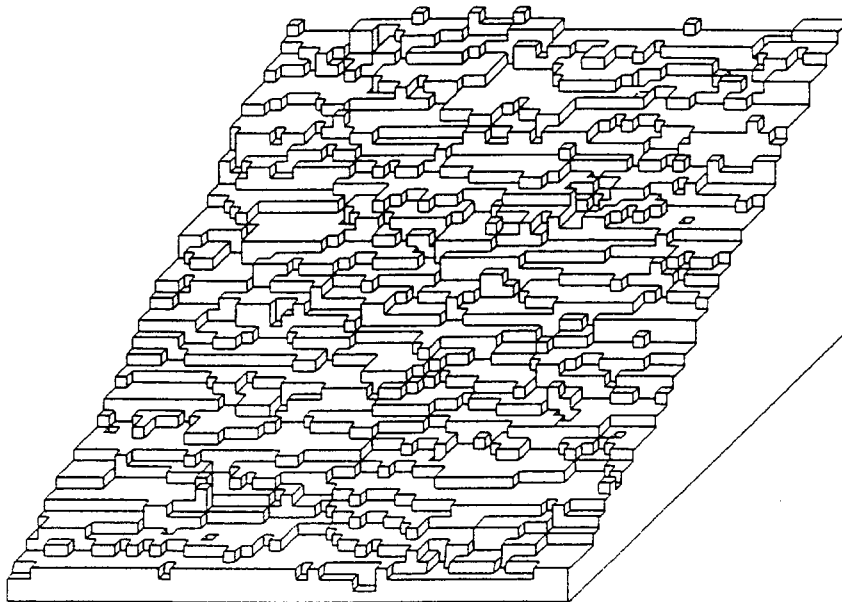


図3-5 ASOSモデルのモンテカルロシミュレーションによって生成された $\rho = 0.5$ の表面のスナップショット。

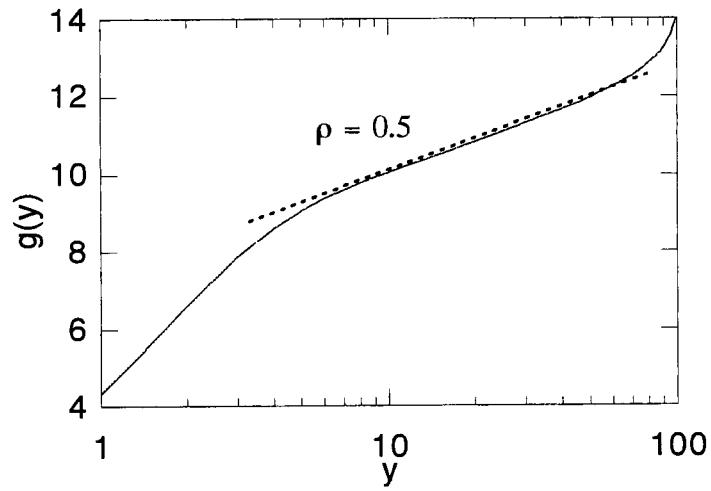


図3-6 ASOSモデルにおける $\rho = 0.5$ の場合のステップ相関関数のモンテカルロ計算結果.

表3-1 free fermion model とASOS model における A および A_z の比較.

		ρ		
		0.1	0.2	0.5
A	free fermion ($1/\pi^2\rho^2$)	10.13	2.533	0.453
	ASOS	-	4.38 ± 0.08	1.14 ± 0.01
A_z	free fermion ($1/\pi^2$)	0.1013	0.1013	0.1013
	ASOS	0.135 ± 0.002	0.175 ± 0.003	0.284 ± 0.002

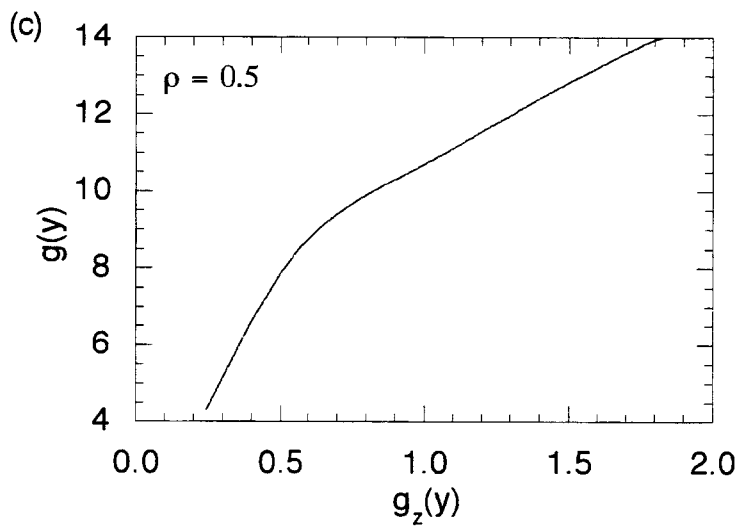
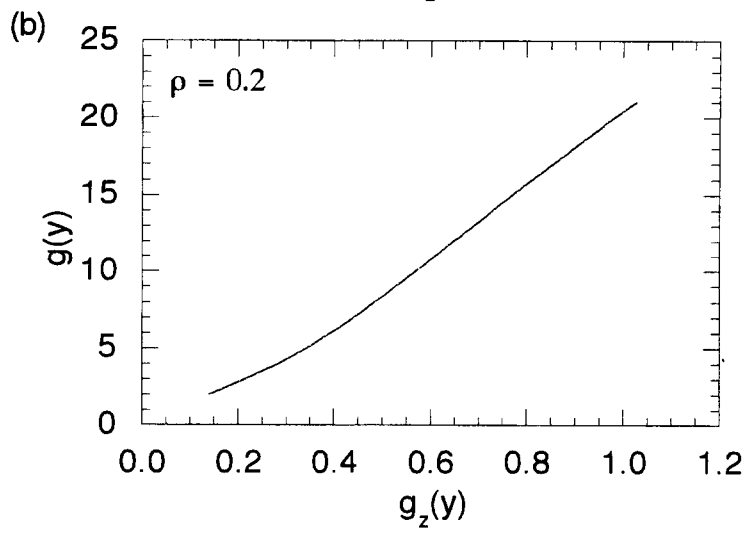
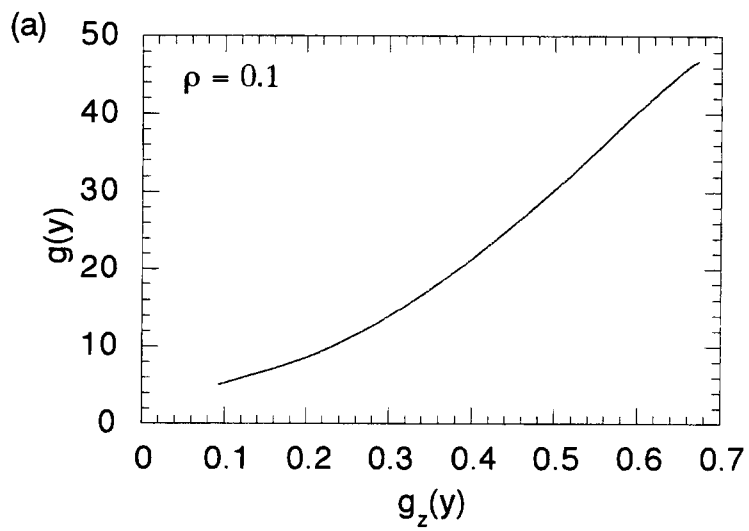


図3-7 $g_z(y)$ - $g(y)$ プロット. (a) $\rho = 0.1$, (b) $\rho = 0.2$, (c) $\rho = 0.5$.

2-5 まとめ

本章では、微視的なASOSモデルにおけるステップ相関関数をモンテカルロ法によって計算し、自由フェルミオンモデルおよびTSKモデルからの理論予測と比較した。その結果、ASOSモデルにおいてもステップ相関関数が対数的に発散することが明らかになった。係数については、自由フェルミオンモデルにおけるユニバーサルな値からずれており、そのずれはステップ密度の増加と共に大きくなる傾向が見られた。さらに、ステップの揺らぎと表面の揺らぎを関係づける式(2-41)が、非常に一般的に成立していることが今回のシミュレーションによって明らかになった。

参考文献

- [1] J. D. Weeks, *Ordering in Strongly Fluctuating Condensed Matter Systems*, ed. T. Riste (Plenum, New York, 1980) p. 293.
- [2] N. Akutsu and Y. Akutsu, *J. Phys. Soc. Jpn.* 56, 1443 (1987).
- [3] Y. Akutsu, N. Akutsu and T. Yamamoto, *Phys. Rev. Lett.* 62, 2637 (1989).
- [4] N. C. Bartelt, T. L. Einstein and E. D. Williams, *Surf. Sci.* 276, 308 (1992).
- [5] T. Yamamoto, Y. Akutsu and N. Akutsu, *J. Phys. Soc. Jpn.* 63, 915 (1994).
- [6] Y. Akutsu, N. Akutsu and T. Yamamoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* 63, 2032 (1994).
- [7] W. J. Shugard, J. D. Weeks and G. H. Gilmer, *Phys. Rev. Lett.* 41, 1399 (1978).
- [8] Y. Saito and H. Müller-Krumbhaar, *Phys. Rev. B* 23, 308 (1981).
- [9] J. Bricmont, J. L. Lebowitz and C. E. Pfister, *J. Stat. Phys.* 26, 313 (1981).
- [10] Y. Akutsu and N. Akutsu, *J. Phys. A Math. Gen.* 20, 5981 (1987).

第4章 STMによるSi(113)表面のファセッティングの観察

4-1 緒言

シリコン表面では、第2章で述べたファセッティングが起こる場合がある。例えば、 $[11\bar{2}]$ 方向や $[1\bar{1}0]$ 方向に傾斜した(111)微斜面においてファセッティングが起こることが知られている[1,2]。この場合、(111)面の 7×7 構造の安定性によってファセッティングが誘導されることが分かっている[3]。シリコン表面においてファセッティングが起こるもう一つの例が、 $[\bar{3}32]$ 方向や $[33\bar{2}]$ 方向に傾斜した(113)微斜面である。(113)面におけるファセッティングは、Mochrieのグループが行ったX線散乱の実験によって明らかになった[3,4]。(111)面の場合と異なる点は、ファセッティングが(113)面の表面再構成とは関係しておらず、ステップ間に直接働く短距離の引力相互作用によって引き起こされている点である。ステップ間に引力が働く特殊な系であることから、Si(113)表面のステップの挙動は理論的にも広く研究されている[5,6]。最近、Shenoyら[7]はSi(113)表面のファセッティングを第2章で述べた相分離現象としてではなく、ステップ間の短距離の引力的相互作用と弾性的な反発相互作用の競合によって起こるサイズの異なるステップバンチ間の相転移現象とみなした新しい理論を展開し、Songらの実験結果を良く再現している。現在のところ、ステップ間の引力相互作用の起源は明らかでないが、Songらの実験結果が再現されることから、ステップ間の引力相互作用の存在は一般的に認められている。

本章では、結晶軸から大きく離れた方位に傾斜したSi(113)微斜面におけるファセッティング転移およびファセッティングのダイナミクスをSTMを用いて調べる。STMを用いて表面の形状を直接観察することで得られるより詳細な情報に基づいて、Si(113)表面のファセッティングの機構について議論する。

4-2 Si(113)表面

シリコン表面には、(001)面や(111)面の様な低指数面だけでなく、高指数面の中にもいくつか安定に存在する面があることが知られている[8]。Gibsonら[9]が、 $[110]$ 方向に傾斜したSi表面を真空中でアニールした時、(001)、(111)、(110)面に加えて(113)面のファセットも観察されたことから、(113)面も低指数面同様、熱的に安定な面であると認知されるようになった。最近では、(113)基板上へのホ

モエピタキシャル成長の研究も行われており[10]、将来的には工学的な応用も期待される。(113)面は、(001)面から 25.2° 、(111)面から 29.5° 傾いており、バルクの構造で終端した時のSi(113)表面は、図4-1に示したように(001)表面原子と(111)表面原子が交互に出現する構造を持つ。Si(113)表面は、約 700°C 以上では無秩序 1×1 構造、 700°C から 500°C の間では 3×1 構造、 500°C 以下では 3×2 構造をとることが知られている[11-15]。これらの表面構造のモデルは、STM実験[16-18]や理論計算[19,20]等によって広く研究されているが、現在のところ完全には解明されていない。室温では、 3×2 構造が最も安定であり、STMで観察すると多くの場合 3×2 構造で形成された表面が観察される[16,17]。図4-2に、室温で得られたSi(113)-(3×2)表面のSTM像を示す。この構造は、STM像において結晶の方位を特定するために用いることができる。図4-3に、Si(113)面上における結晶方位を示す。Si(113)表面の構造は $[\bar{3}32]$ 方向に関して対称である。一般に、微斜面の方位は極座標を用いて面の傾斜する方向 θ と面の傾斜角 ϕ によって指定される(図2-3参照)。以下の議論では、最も対称性の高い $[\bar{3}32]$ 方向を $\theta = 0^\circ$ の方向とする。

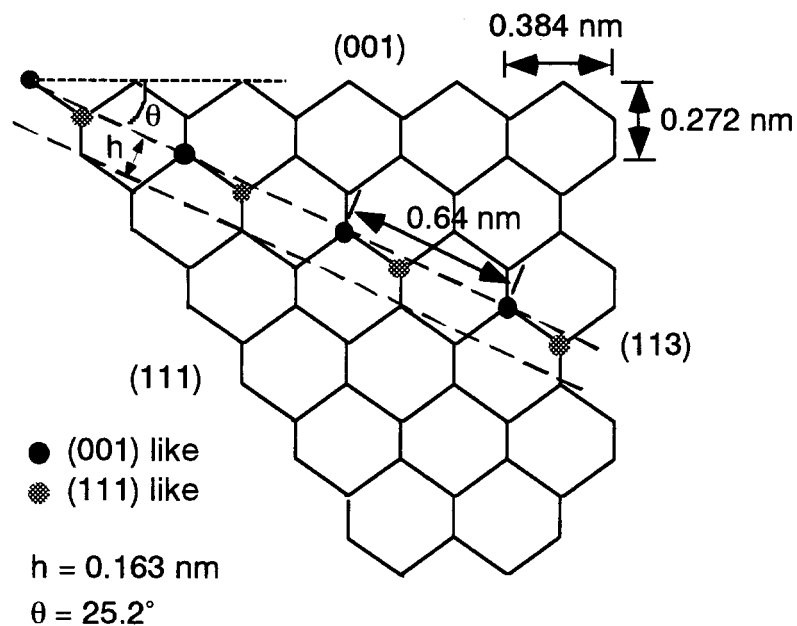


図4-1 シリコン結晶の断面図。

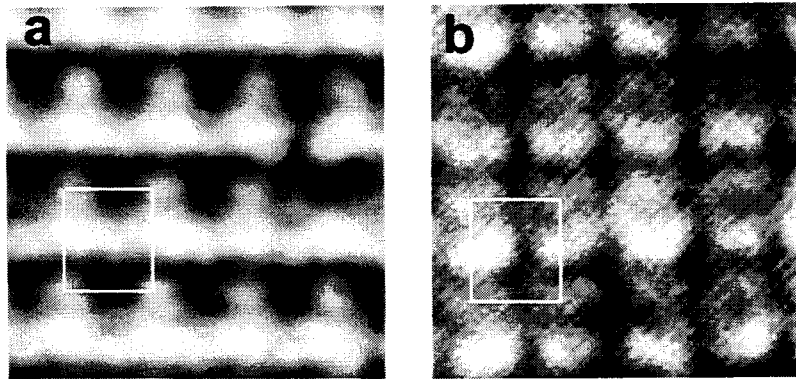


図4-2 Si(113)-(3×2)表面のSTM像．試量バイアス：(a)2.0 V, (b)-2.0 V.

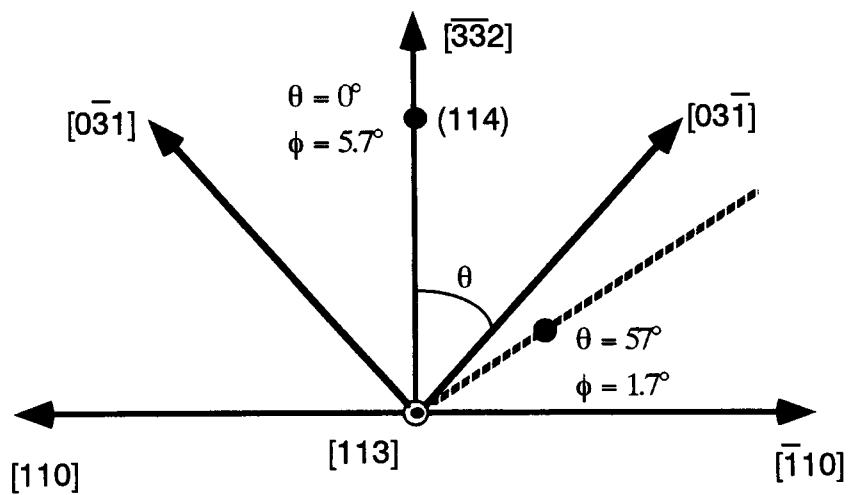


図4-3 (113)面上の結晶方位．

4-3 実験

本研究で調べた試料は、 $\theta = 57^\circ$ の方向に $\phi = 1.7^\circ$ 傾斜したn型Si(113)ウエハである。この試料は、Mochrieらが調べた試料 ($\theta \approx 0^\circ$ に傾斜した微斜面) と比べて傾斜方向が結晶軸から著しく外れており、表面形状の対称性が低くなっている (図4-3)。

実験では、市販の超高真空走査型トンネル顕微鏡 (UHV-STM ; 日本電子製 : JSTM-4610) を用いた。本システムの超高真空チャンバーは、試料交換室、試料処理室、像観察室の3室構成になっている。像観察室の到達真空度は、 2.0×10^{-8} Paであり、清浄な試料表面を長時間に渡って保持することが可能である。本システムの像観察室には、高温下での像観察が可能な高温STM、低速電子線回折 (RHEED) 装置および走査型電子顕微鏡 (SEM) が装備されている。SEMはSTMの探針の状態の確認、および試料表面上でのSTM観察位置を特定するのに用いる。

STM観察用のシリコン試料は、市販のシリコンウエハー (抵抗率 : $1 \sim 10 \Omega \text{ cm}$, 厚さ : $0.3 \sim 0.4 \text{ mm}$) から短冊型 (幅 : $1 \text{ mm} \sim 2 \text{ mm}$, 長さ : 7 mm) に切り出したものを用いる。試料の加熱は、試料処理室および像観察室内において通電によって行うことができる。標準的なシリコン試料の場合、3Aの電流で 1200°C 程度まで加熱することが出来る。試料の温度測定には、放射温度計を用いた。

試料は、アセトンで10分間程度超音波洗浄したのち、超高真空チャンバー内へ導入する。市販のシリコンウエハーの表面は、通常自然酸化膜で保護されているので、超高真空中でフラッシングによって酸化膜を除去することでシリコンの清浄表面を得ることができる。化学エッチングによって酸化膜を除去すると、空気中の不純物によって表面が汚染されるので、通常の実験では化学エッチングは行わない。シリコン清浄表面を得るための手順は以下の通りである。

1) 約 500°C 程度で12時間試料を加熱し、試料ホルダおよび試料の脱ガスをう。この時、真空度は 1.0×10^{-6} Pa以下に保つようにする。2) 1.0×10^{-7} Pa以下の真空度を保ちながら 1200°C で延べ1分間フラッシングを行う。

今回の実験では、上記のプロセスによって得られたシリコン清浄表面にアニーリング処理を施してから、室温まで急冷してSTM観察を行った。試料の急冷は加熱電流を切ることによって行う。この方法で実現される試料の冷却速度はおよそ 200°C/s である。STM観察を行う時の測定条件は、試料バイアスは $-2.0 \text{ V} \sim 2.0 \text{ V}$ 、トンネル電流は 0.3 nA である。

4-4 実験結果と考察

4-4-1 表面形状の温度依存性

図4-4に、Si(113)試料を1000°Cでアニールした時の表面のSTM像 (current image) を示す。表面は、単原子ステップ (高さ0.163 nm)、2原子層ステップ、3原子層ステップから構成される。挿入図は、テラス上を拡大したSTM像 (topographic image) であり、(3×2)再構成が確認される。図で示した結晶軸の方向は、この(3×2)構造より確認したものである。平均的なステップの方位は、微斜面の傾斜方向に対して垂直である。このSTM像では、平均的なステップの方位が $[\bar{1}10]$ 方向から 35° 程度ずれていることが分かる。

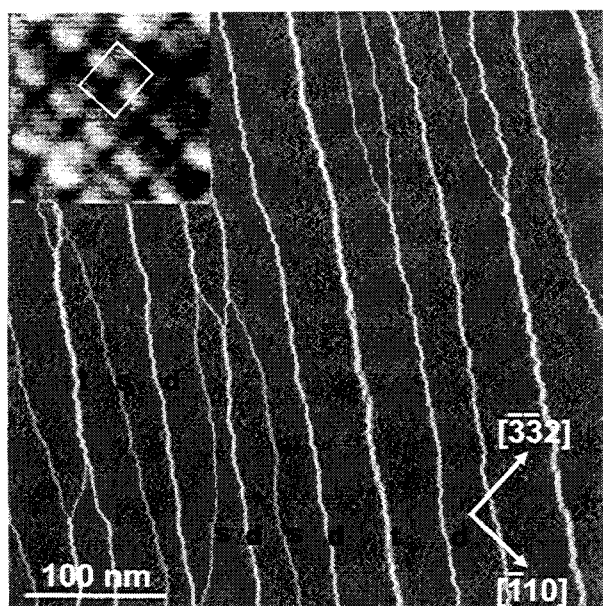


図4-4 1000°Cでアニールした表面のSTM像。挿入図はテラス部分の拡大。

試料を様々な温度でアニールした後STM観察を行って、表面形状の温度依存性を調べた。図4-5(a)に、試料を900°Cで5分間アニールした時の表面の様子を示す。また、図4-5(b)-(e)に、試料を900°Cで1分間以上アニールした後、それぞれ725°C、700°C、690°Cおよび650°Cで10分間アニールした時の表面の様子を示す。高温では、単原子層ステップが均一に分布した表面が安定であると考えられるが、今回の実験ではこのような表面は観察されなかった。図4-5(a)と図4-5(b)を比較すれば分かるように、720°C以上でアニールした時の表面の形状はほとんど同じで、表面は単原子層ステップ、2原子層ステップ、3原子層ステップから構成される。これは、試料の冷却速度が高温での平衡状態を凍結できるほど早くないため、冷却過程において720°C付近における平衡状態へ緩和したためと考えられる。720°C~690°Cの範囲でアニールした時、3原子層以上の高さのステップが出現し、平均テラス幅が増加する(図4-5(c), (d))。この時、平均テラス幅は5分間程度アニールすると飽和し、その後アニールを継続しても表面形状が変化しないことから、図4-5(c), (d)に示した表面形状は局所的平衡状態に達しているものと考えられる。690°C以下でアニールした場合(図4-5(e))、ファセッティングが起これ、アニール時間の増加と共に、ステップバンチングに伴いテラス幅が100nm以上にまで増加し続ける。以上の表面形状の変化が可逆的であること、及びこの温度領域では昇華がほとんど起こらないことから、720°C以下でアニールした時に得られる表面形状は熱平衡状態もしくは熱平衡状態への緩和過程での形状であると考えられる。720°C以下でアニールした時にテラス幅の増加が見られることから、ファセッティング温度は720°C近傍であると推測される。本実験では試料を通電によって加熱しているので、通電の表面形状への影響を考慮しなければならないが、これについては後で議論する。

4-4-2 ファセッティング温度

$\theta = 57^\circ$ の微斜面のファセッティング温度が約720°Cであることが分かったが、これは $\theta = 0^\circ$ の微斜面のファセッティング温度(約900°C) [3]と比べて著しく低い。本節では、この転移温度の相違について考察する。

(113)表面は700°C付近で、 3×1 構造から無秩序な 1×1 構造へと相転移することが知られている。Si(113)表面では、この構造相転移の転移温度以上においてもファセッティングが起きることから、(113)表面のファセッティングは表面再構成とは関係しておらず、ステップ間の引力的な相互作用によって引き起こ

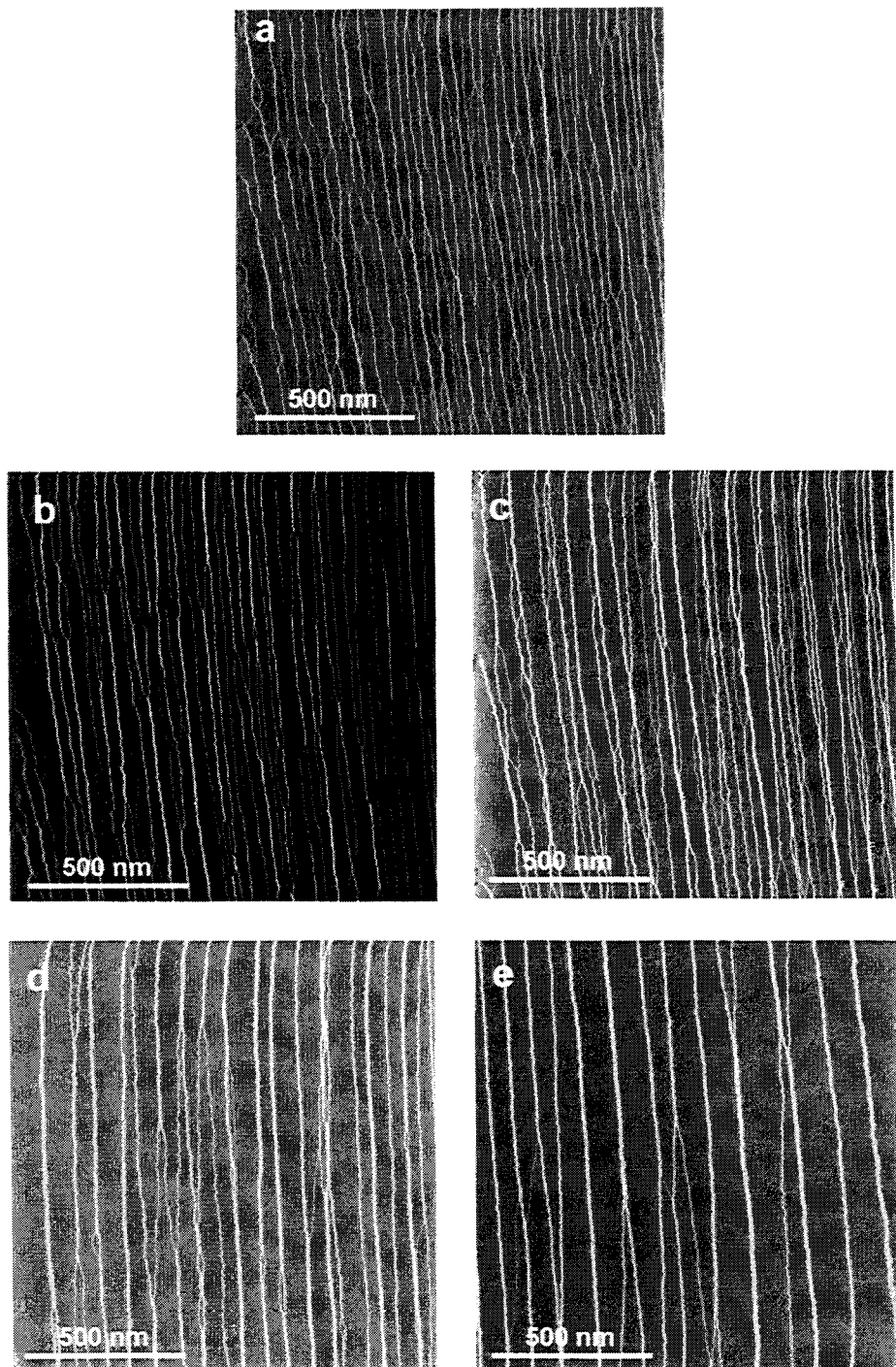


図4-5 様々な温度でアニールした時の表面のSTM像(1300nm×1300nm). (a)900 °C, (b)725°C, (c)700°C, (d)690°C, (e)650°C.

されると考えられている[3]。現在のところ、ステップ間の引力的相互作用の物理的な起源は明らかにされていないが、Baskiら[8]が示したシリコン高指数面の原子分解STM像では、ステップで様々な原子の再配列が観察されており、こうしたステップ部分での再配列が短距離で作用するステップ間引力相互作用として働くことが推測される。図4-6に、 $\overline{[332]}$ 方向 ($\theta = 0^\circ$) に傾斜したSi(113)表面と、 $\theta = 57^\circ$ の方向に傾斜した表面のステップバンチ (step bunch) の原子分解STM像を示す。 $\theta = 0^\circ$ の方向に傾斜した表面の場合 (図4-6(a))、ステップバンチの部分は(114)ファセットが形成されており、 2×1 構造[20]が観察される。この場合には、Si(114)-(2 \times 1)表面の安定性が(113)表面のステップ間に働く短距離の相互作用としての役割を果たしていると考えられる。一方、 $\theta = 57^\circ$ の方向に傾斜した表面のステップバンチの構造は、 $\theta = 0^\circ$ の方向に傾斜した表面のステップバンチの構造とは大きく異なり、(114)ファセットの様な原子レベルで平坦な構造は観察されなかった。ステップバンチは、単原子ステップや2原子層ステップのような高さの低いステップから形成されており、原子レベルでラフな構造が見られる。また、平均的なステップの方位が結晶軸から大きく離れているので、ステップはジグザグ構造をとっている。(113)面から測ったステップバンチの傾斜角は、 $7^\circ \sim 18^\circ$ であり、(114)面と(113)面との角度 5.7° よりはるかに大きい。また、図4-6(b)において矢頭で示したように、2原子層ステップはしばしば鋭いエッジを持った構造として観察される。この事は、2原子層ステップでは原子の組みかえが起こり、新しい安定な構造を形成していることを示唆している。この2原子層ステップの安定性は、ステップ間に引力的な相互作用が働く一つの物理的要因であると考えられる。

第2章において議論したように、一様にステップが分布した表面よりも、ステップが集まった方が全表面自由エネルギーが下がる場合にファセッティングが起こる。低温では、ステップ間の引力相互作用のために、ステップが集まっていた方が表面自由エネルギーが下がる。温度が上がると、エントロピーに起因するステップ間の反発力が強くなり、ファセッティング温度以上になるとステップ間の反発力がステップ間の引力に打ち勝ち、ファセッティングは起きない。この議論に基づけば、 θ の増加とともにファセッティング温度が下がる物理機構として以下の二つの場合が考えられる。

(1) θ の増加とともにステップ間の引力的相互作用が減少する。

(2) θ の増加とともにステップ間の反発力が増加する。

図4-6のSTM像から分かるように、 $\theta = 57^\circ$ の表面のステップバンチの構造は、 $\theta = 0^\circ$ の表面のステップバンチの構造と比べて原子的にラフであり、ステップ間

の引力相互作用によるエネルギーの利得が小さくなっていることが予想され、
（１）の機構を示唆している。（２）の機構に関しては、 $[\bar{1}10]$ に傾斜した表面
（ $\theta = 90^\circ$ ）において、非常に強いステップ間の反発力が存在することが明らか
かになっている[22]。

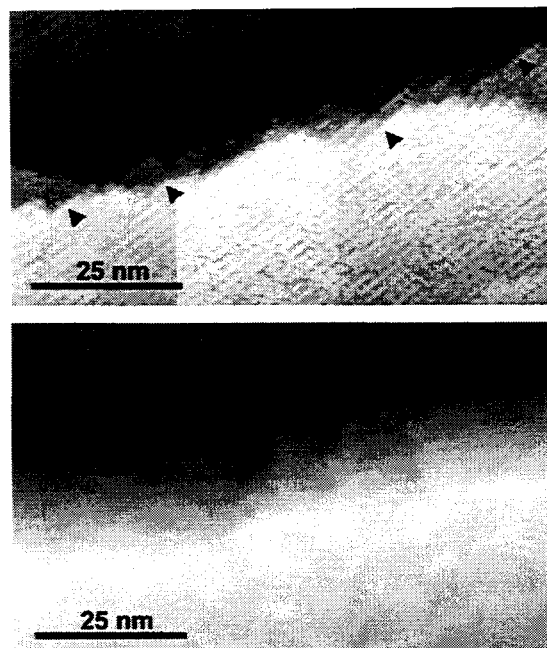


図4-6 ステップバンチの原子分解STM像。
微斜面の傾斜方向：(a) $\theta = 0^\circ$, (b) $\theta = 57^\circ$ 。

4-4-3 テラス幅のアニール時間依存性

ファセッティングの過程で、表面形状が時間とともにどのように変化するかを明らかにするため、アニール時間を変えて表面形状を測定した実験について述べる。図4-7に650°Cにおいて様々なアニール時間に対して得られた表面のSTM像（走査領域：1.3 μm ×1.3 μm , current image）を示す。(113)テラスのサイズが、ステップバンチングを伴いながら増大してゆくことが分かる。表面形状の時間的な変化を定量化するため、表面形状を特徴づける量である平均テラス幅 L をSTM像より測定した。図4-8に、アニール時間と平均テラス幅の関係を示す。両対数プロットにおいて、平均テラス幅が直線上に乗っていることから、平均テラス幅がアニール時間 t に対して、

$$L(t) \propto t^\phi \quad (4-1)$$

の様にべき則に従って増加していることが分かる。直線の傾きからスケーリング指数 ϕ を求めると、アニール温度が600°Cの時 0.15 ± 0.02 、650°Cの時 0.16 ± 0.01 であった。

実験で得られた指数は1/6に近く、 $\theta = 0^\circ$ の表面についてMochrieらが得た指数と良く一致する[23,24]。図4-6に示したように $\theta = 0^\circ$ の表面と $\theta = 57^\circ$ の表面ではミクロスコピックなステップの構造は大きく異なるが、ファセッティングのダイナミクスは同じメカニズムで説明されると考えられる。Songらは指数 $\phi = 1/6$ で特徴づけられる動的スケーリング則を説明するモデルを提案している[24]。Songらのモデルによると、ステップの熱的な揺らぎによって隣接するステップと衝突し、隣接するステップと合体することでファセッティングが進行すると考えている。Songらは、ステップスティフネスがステップバンチに含まれるステップの数に比例すること、及びステップの移動度がステップバンチに含まれるステップの数に反比例することを仮定して、指数 $\phi = 1/6$ を導出している。ここで紹介したファセッティングのダイナミクスに関するモデルの妥当性については実験的には十分に明らかにされていないが、現在のところ $\phi = 1/6$ のスケーリング性を説明する唯一のモデルである。また、このモデルにおけるステップスティフネスに関する仮定については、第5章において検証される。

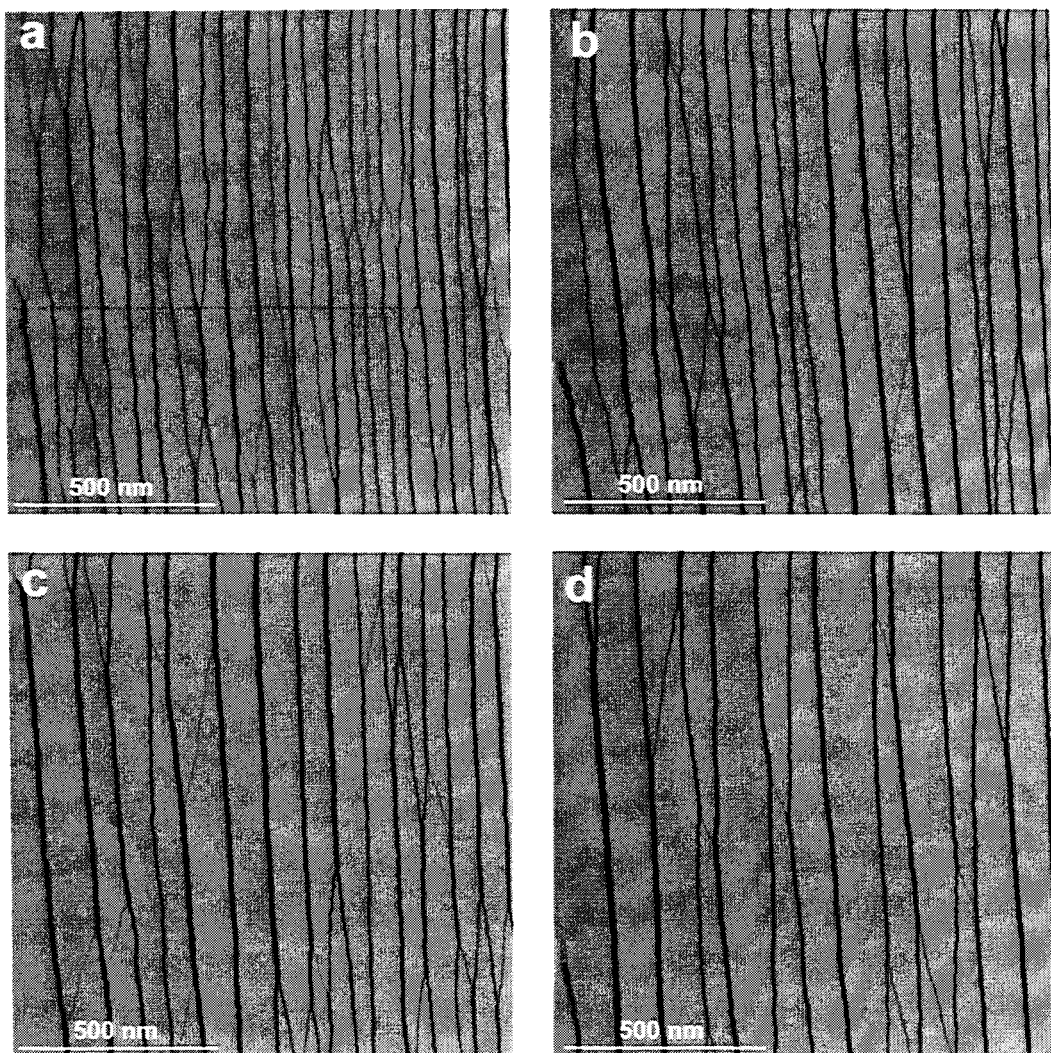


図4-7 様々なアニール時間に対する表面のSTM像。
アニール温度：650°C，アニール時間：(a)1min, (b)4min, (c)8min, (d)32min.

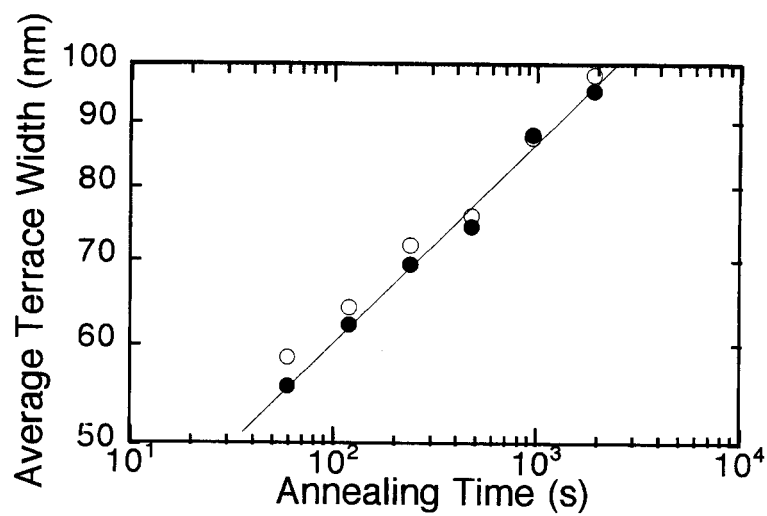


図4-8 平均テラス幅のアニール時間依存性.

4-4-4 通電の影響

今回の実験では、試料に直流電流を流して加熱しているため、通電の表面形状への影響を調べておく必要がある。例えばSi(111)表面上では、通電の影響で表面上のシリコン吸着原子の拡散が非等方的になり、その結果としてステップバンチングが誘導されることが知られている[25]。また、(113)面と(5 5 12)面の間の方位の表面においても、850°C付近で表面形状への通電の影響があることが報告されている[26]。従って、通電効果の影響の有無を調べておくことは、ファセッティングの物理的メカニズムを議論するうえで重要である。そこで、

アニールする時の通電方向を逆にして実験を行い、平均テラス幅をアニール時間の関数として測定した。図4-9は、電流の向きが $[\bar{3}\bar{3}2]$ および $[33\bar{2}]$ 方向の時の、平均テラス幅とアニール時間の関係である。電流方向を反転させても、表面形状の変化に有意な違いは見られないことが分かる。従って、今回観察された表面形状の変化は、ほとんど通電の影響を受けず、熱的な効果によって起こっていると結論される。従って、今回の実験で観察されたSTM像は、平衡状態もしくは平衡状態への緩和過程にある表面の形状を示していると結論づけられる。

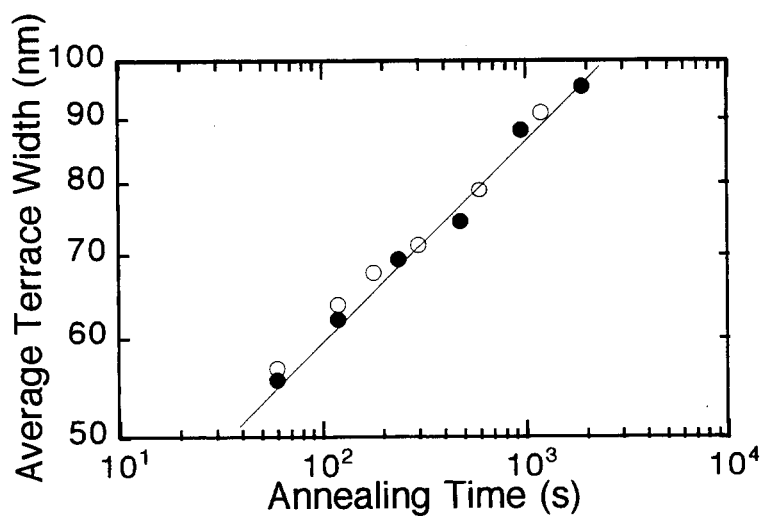


図4-9 通電方向を逆にした時の平均テラス幅とアニール時間の関係。

4-5 まとめ

本章では、対称性の低い $\theta = 57^\circ$ の方向に $\phi = 1.7^\circ$ 傾斜したSi(113)微斜面におけるファセッティングとそのダイナミクスをSTMによって調べた。今回の実験で明らかになったことは以下の通りである。

(1) $\theta = 57^\circ$ の微斜面においてもファセッティングが起こるが、ファセッティング温度はおよそ 720°C であり、 $\theta = 0^\circ$ の場合と比べて著しく低い。

(2) $\theta = 0^\circ$ の微斜面の場合、ステップバンチの部分に(114)面のファセットが形成されるが、 $\theta = 57^\circ$ の微斜面のステップバンチの構造は原子レベルでラフである。

(3) Mochrieのグループが $\theta = 0^\circ$ の微斜面で得た結果と一致して、ファセッティングの過程では平均テラス幅 l はアニール時間 t に対して $l \propto t^{1/6}$ の様にべき則に従って増加する。微斜面の傾斜方向 θ に依存して原子レベルでのステップの構造は大きく変化するが、ファセッティングのダイナミクスは同じ機構で説明される。

(4) 表面形状は、試料の加熱に用いた直流電流の影響を受けておらず、ファセッティングは熱的に誘導されている。

参考文献

- [1] E. D. Williams and N. C. Bartelt, *Science* 251, 393 (1991).
- [2] R. J. Phaneuf, E. D. Williams and N. C. Bartelt, *Phys. Rev. B* 38, 1984 (1988).
- [3] D. Liu, J. D. Weeks, M. D. Johnson, E. D. Williams, *Phys. Rev. B* 55, 7653 (1997).
- [3] S. Song and S. G. J. Mochrie, *Phys. Rev. Lett.* 73, 995 (1994).
- [4] S. Song and S. G. J. Mochrie, *Phys. Rev. B* 51, 10068 (1995).
- [5] S. M. Bhattacharjee, *Phys. Rev. Lett.* 76, 4568 (1996).
- [6] M. Lüssig, *Phys. Rev. Lett.* 77, 526 (1996).
- [7] V. B. Shenoy, S. Zhang and W. F. Saam, *Phys. Rev. Lett.* 81, 3475 (1998).
- [8] A. A. Baski, S. C. Erwin, and L. J. Whitman, *Surf. Sci.* 392, 69 (1997).
- [9] J. M. Gibson, M. L. McDonald and F. C. Unterwald, *Phys. Rev. Lett.* 55, 1765 (1985).
- [10] V. Dorna, Z. Wang and U. Köhler, *Surf. Sci.* 401, L375 (1998).
- [11] J. Schreiner, K. Jacobi and W. Selke, *Phys. Rev. B* 49, 2706 (1994).
- [12] Y. -N. Yang, E. D. Williams, R. L. Park, N. C. Bartelt and T. L. Einstein, *Phys. Rev. Lett.* 64, 2410 (1990).
- [13] U. Myler and K. Jacobi, *Surf. Sci.* 220, 353 (1989).
- [14] D. L. Abernathy, R. J. Birgeneau, K. I. Blum and S. G. J. Mochrie, *Phys. Rev. Lett.* 71, 750 (1993).
- [15] D. L. Abernathy, S. Song, K. I. Blum, R. J. Birgeneau and S. G. J. Mochrie, *Phys. Rev. B* 49, 2691 (1994).
- [16] J. Knall, J. B. Pethica, J. D. Todd and J. H. Willson, *Phys. Rev. Lett.* 66, 1733 (1991).
- [17] J. Dabrowski, H. -J. Müssig and G. Wolff, *Surf. Sci.* 331-333, 1022 (1995).
- [18] H. Sakama, D. Kunimatsu, M. Kageshima and A. Kawazu, *Phys. Rev. B* 53, 6927 (1996).
- [19] W. Ranke, *Phys. Rev. B* 41, 5243 (1990).
- [20] K. A. Feng, X. M. Hu, Z. Lin and Y. R. Xing, *Appl. Surf. Sci.* 120, 94 (1997).
- [21] S. C. Erwin, A. A. Baski and L. J. Whitman, *Phys. Rev. Lett.* 77, 687 (1996).
- [22] S. van Dijken, H. J. W. Zandvliet and B. Poelsema, *Phys. Rev. B* 55, 7684 (1997).
- [23] S. Song, S. G. J. Mochrie and G. B. Stephenson, *Phys. Rev. Lett.* 74, 5240 (1995).

- [24] S. Song, M. Yoon, S. G. J. Mochrie, G. B. Stephenson and S. T. Milner, *Surf. Sci.* 372, 37 (1997).
- [25] A. V. Latyshev, A. L. Aseev, A. B. Krasilnikov, S. I. Stein, *Surf. Sci.* 227, 24 (1990).
- [26] T. Suzuki, H. Minoda, Y. Tanishiro and K. Yagi, *Surf. Sci.* 348, 335 (1996).

第5章 Si(113)表面におけるステップの揺らぎ

5-1 緒言

第4章で述べたように、Si(113)微斜面ではステップ間に働く短距離の引力的な相互作用によってファセッティングが起こる。ファセッティング温度以下では、この表面上のステップは束 (bunch) を形成しながら運動しているので、個々の単原子ステップの振る舞いよりもステップの集団としての振る舞いが重要となる。Songら[1]は、実験で観察されているファセッティング過程における平均テラス幅のアニール時間依存性[1-3]を、ステップスティフネスがステップバンチ (step bunch) に含まれる単原子ステップの数 (以後、バンチサイズと呼ぶ) に比例すること、およびステップの移動度[4]がバンチサイズに反比例することを仮定して説明している。従って、ステップバンチの熱力学的性質は、平衡状態における表面形状だけでなく、ファセッティングのダイナミクスを議論するうえでも重要となる。これまで、結晶表面上の単原子ステップの挙動については実験的・理論的に広く調べられているが[5]、ステップがバンチを形成した時の挙動についてはほとんど明らかにされていない。Si(113)表面は、ステップバンチの集団としての熱力学的性質を調べるうえで適した系であると言える。本章では、STMを用いて、Si(113)表面上に共存している様々なサイズのステップバンチについてステップ相関関数を測定し、ステップスティフネスのバンチサイズ依存性について論じる。以前に、STM[6]、REM[7]及びLEEM[8]のデータから単原子ステップのステップスティフネスが測定されており、ここではこれらと同じ方法を用いてSTM像よりステップスティフネスの測定を行う。また、ステップ間の引力的な相互作用を考慮したTSK (terrace-step-kink) モデルに基づいてステップスティフネスのバンチサイズ依存性について考察し、実験結果の定性的な理解を試みる。

5-2 実験

実験では、第4章で述べたものと同じn型Si(113)ウエハーから切り出した試料を用いた。第4章で示した手順によって清浄表面を得た後、試料を通電加熱によって710°Cで10分間アニールし、室温まで急冷してからSTM観察を行った。STM測定時の試料バイアスは2.0V、トンネル電流は0.3nAである。ステップ相関関数の測定には600 nm × 600nmのSTM像を用いた。測定時の試料のドリフトはステップ相関関数の

精度に影響するが、今回の実験では測定時の走査方向をステップに平行になるようにしてドリフトの影響を最小にした。

5-3 実験結果

5-3-1 ステップの構造

図5-1は、710°Cで10分間アニールした後、室温まで急冷して得られたSi(113)表面のSTM像(360 nm × 360 nm)である。表面には単原子層から4原子層の高さのステップが共存している。この表面形状は、第4章で述べたように710°Cにおける平衡状態を反映していると考えられる。

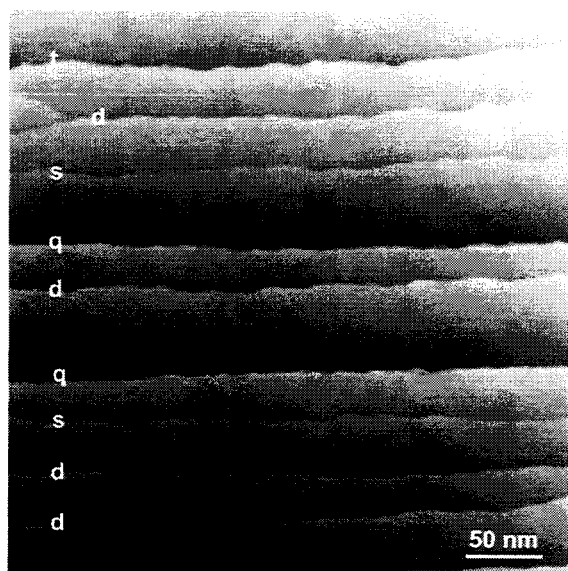


図5-1 710°Cで10分間アニールした時の表面のSTM像(360nm × 360nm).
s: single step, d: double step, t: triple step, q: quadruple step.

1～4原子層ステップの高分解STM像を図5-2に示す。テラス上には(3×2)再構成[9,10]が観察され、これによって結晶学的方位を確認することができる。平均的なステップの方位が結晶学的方位から大きくずれているため、単原子ステップ(図5-2(a))と2原子層ステップ(図5-2(b))は、 $[\bar{1}10]$ 方向および $[0\bar{3}1]$ 方向に沿ったステップからなるジグザグな構造になっている。特に2原子層ステップは、図5-2(b)に見られるように、しばしば鋭いエッジを形成しており、2原子層ステップではステップ部分で原子の再配列が起こり安定な構造をとっているものと推測される。一方、3原子層(図5-2(c))および4原子層ステップ(図5-2(d))では、単原子ステップや2原子層ステップに分裂しておりステップバンチの段差部には原子レベルでラフな構造が観察される。

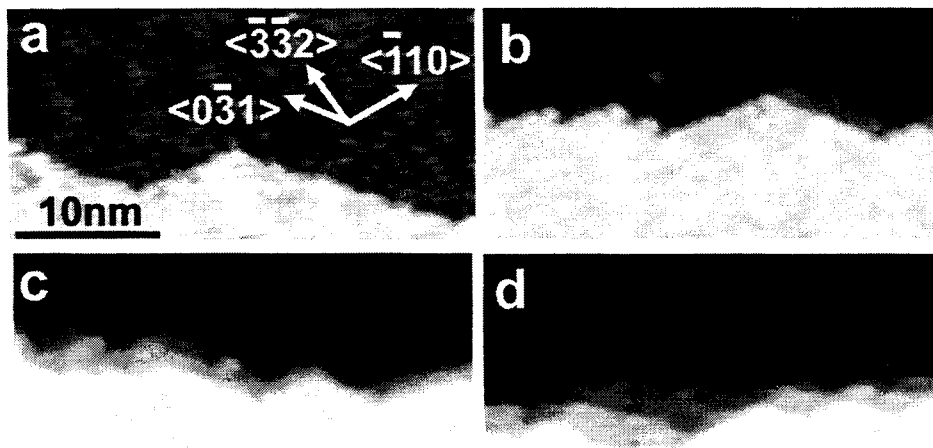


図5-2 ステップ端の高分解STM像(32nm×16nm).
(a)single step, (b)double step, (c)triple step, (d)quadruple step.

5-3-2 ステップスティフネスのバンチサイズ依存性

まず、STM像におけるステップの揺らぎを定量化するため、STM像よりステップの形状を抽出する。ステップバンチの場合、ステップはテラス面に投影したとき有限の幅を持つが、その幅がテラス幅に比べて十分に小さければ、粗視化することによってステップバンチも一本の紐の様に扱うことができる。従って、 N 層のステップバンチに対する揺らぎ幅 σ_N^2 およびスティフネス $\tilde{\beta}_N$ を導入すれば、第2章で述べた単原子層ステップの揺らぎに関する議論は容易にステップバンチに対して一般化することが出来る。そこで、STM像より得られたステップの形状について、ステップが平均的に走る向きを y -軸、それと垂直な向きを x -軸にとって一本のステップの形状を一価関数 $x(y)$ として測定し、ステップ相関関数

$$g(y) = \langle [x(y) - x(0)]^2 \rangle \quad (5-1)$$

を計算した。単一ステップについての理論を適用するために、STM像において650 nm以上の距離に渡って、隣接するステップと衝突や合体せず、孤立して揺らいでいるとみなせるステップのみを解析の対象とした。図5-3に、単原子層から4原子層ステップに対してSTM像から測定したステップ相関関数を示す。図5-3に示した $g(y)$ は、それぞれ5~12本のステップに対して測定した独立なデータを平均して得られたものである。小さな y では、平衡状態の単一ステップにおいて期待される式(2-33)の振る舞いと一致して、確かに相関関数 $g(y)$ が距離 y に比例していることが確認される。 $g(y)$ の傾き、すなわちスケールされた揺らぎ幅 σ_N^2 を求めたところ、 $\sigma_1^2 = 0.15 \pm 0.01$ nm、 $\sigma_2^2 = 0.100 \pm 0.005$ nm、 $\sigma_3^2 = 0.052 \pm 0.001$ nm、 $\sigma_4^2 = 0.040 \pm 0.005$ nmであった。揺らぎ幅 $\sigma_1^2 = 0.15$ nm および平均テラス幅 $\bar{l} = 35$ nmを用いて、式(2-34)で定義されるステップ同士の衝突の影響が出始める目安となる距離 y_{coll} を求めると、約2 μ mであった。従って、図5-3において $g(y)$ と y の比例関係が確認される領域は衝突距離よりも十分小さく、 $g(y)$ の振る舞いはほとんどステップ同士の衝突の影響を受けていないと考えられる。第2章において述べたように、 $g(y)$ は y が大きくなるとステップ同士の衝突の影響により揺らぎが抑制され対数的に増大することが予想されるが、今回の測定では y が大きなところでの $g(y)$ の振る舞いを調べることは出来なかった。また、図5-3において、単原子ステップの場合を除いて $g(0) = 0$ を通らないのは、ステップバンチが有限の幅を持っているためであると考えられる。しかし、ステップバンチの幅に起因する短波長の揺らぎは、 $g(y)$ のスケールリングには影響しない。

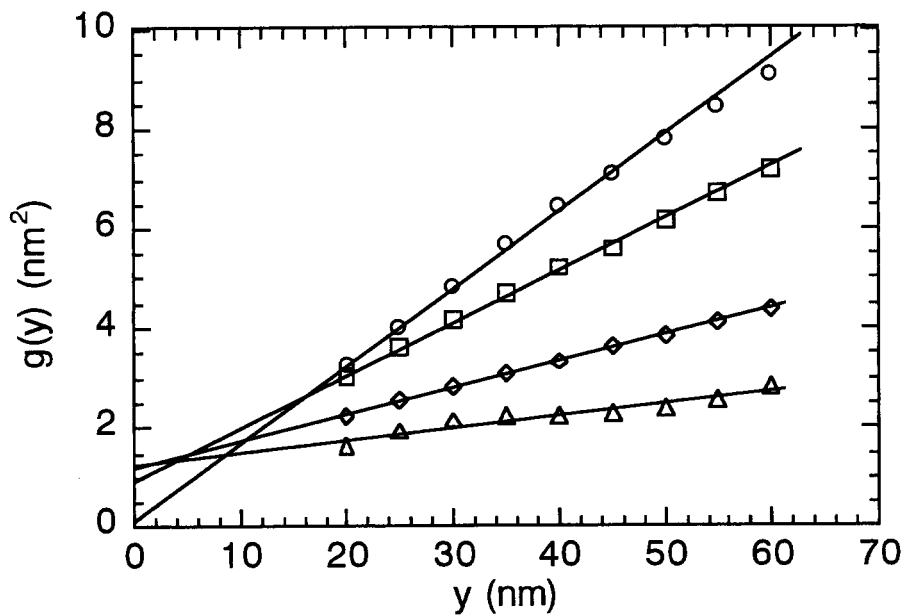


図5-3 STM像から測定したステップ相関関数。
 (○) single step, (□) double step, (◇) triple step, (△) quadruple step.

表面が710°Cでの平衡状態にあると仮定して、バンチサイズ N のステップバンチに対するステップスティフネス $\tilde{\beta}_N$ ：

$$\tilde{\beta}_N = \frac{kT}{\sigma_N^2} \quad (5-2)$$

を求めると、 $\tilde{\beta}_1 = 57 \text{ meV/\AA}$ 、 $\tilde{\beta}_2 = 85 \text{ meV/\AA}$ 、 $\tilde{\beta}_3 = 163 \text{ meV/\AA}$ 、 $\tilde{\beta}_4 = 220 \text{ meV/\AA}$ と評価される。図5-4は、スティフネスをステップの高さの関数としてプロットしたものであるが、2原子層ステップを除いてステップスティフネス $\tilde{\beta}_N$ はバンチサイズ N に比例していることが分かる。

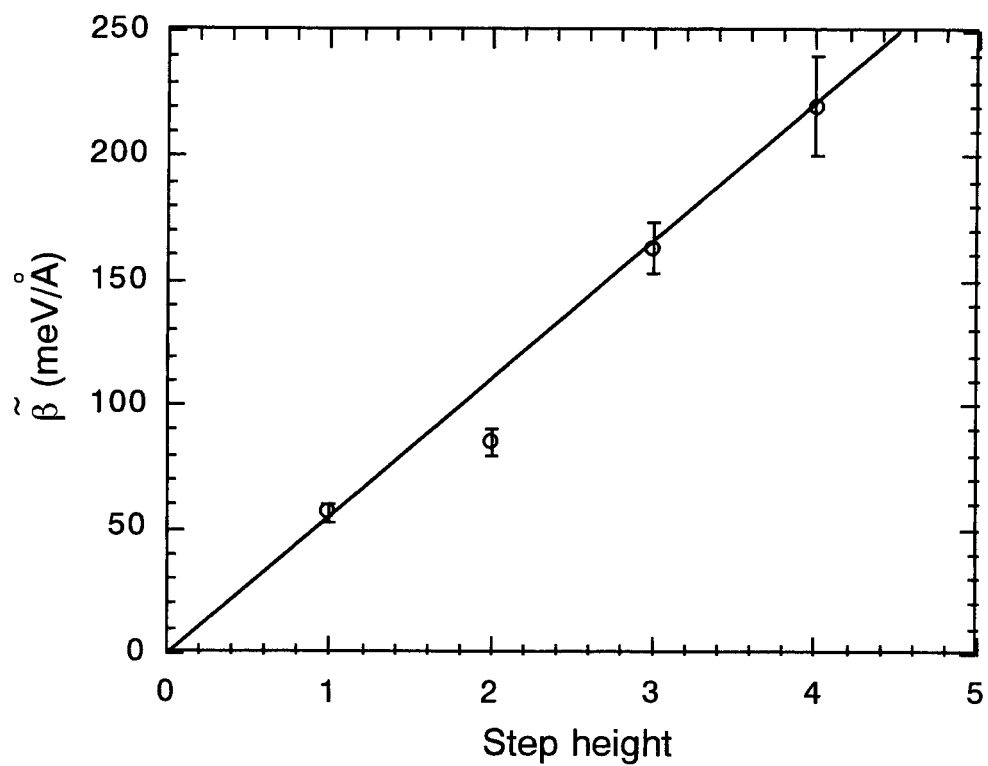


図5-4 ステップスティフネスとステップの高さの関係。
 ステップの高さは、単原子ステップの高さ1.63 Åを単位としている。

5-4 TSKモデルによる考察

本節では、実験で得られたステップスティフネスのバンチサイズ依存性についてTSKモデルを用いて定性的な考察を行う。ここでは、Si(113)表面上のステップの性質を再現するため、短距離で働くステップ間の引力的相互作用を考慮することにする(図5-5)。格子定数が a_y と a_x の格子上で N 本のステップからなる系のハミルトニアンとして、

$$H = \sum_{i=1}^N \sum_{y=1}^L \epsilon |n_i(y)| - \sum_{i=1}^{N-1} \sum_{y=1}^L \epsilon_a \delta_{x_i(y), x_{i+1}(y)} \quad (5-3)$$

を考える。ここで、 $x_i(y)$ は i -番目のステップの形状、 ϵ はキンクエネルギー、 $|n_i(y)|$ はキンクの長さ($n_i = [x_i(y) - x_i(y+1)]/a_x$)、 ϵ_a はステップ間の引力相互作用、 δ はクロネッカーのデルタである。第1項は、一般的なTSKモデルで扱われるキンクの励起によるエネルギーの増加を表わす。第2項は、短距離の引力的なステップ間相互作用を表わす項であり、引力相互作用は2本のステップが重なった時(すなわち、 $x_i(y) - x_{i+1}(y) = 0$)にのみ働く。

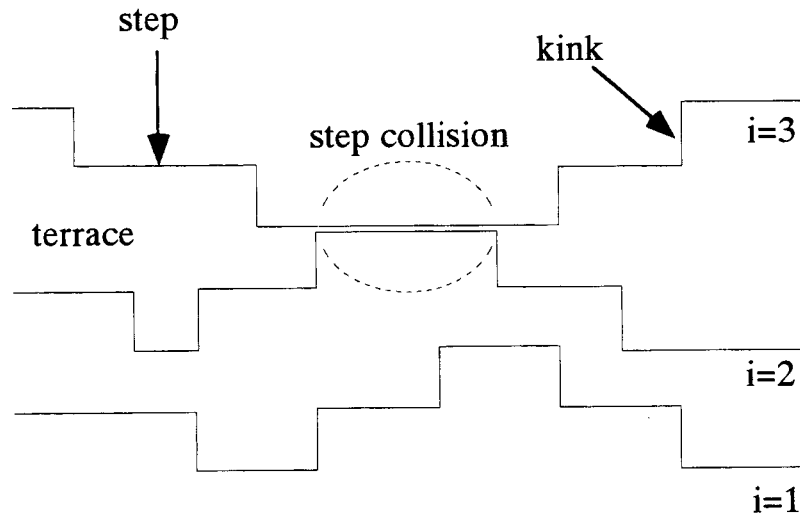


図5-5 ステップ間の短距離の引力相互作用を考慮したTSKモデルの模式図

N 本のステップの集団としての揺らぎを議論するために、各における N 本のステップの平均位置

$$\bar{x}(y) = \sum_{i=1}^N x_i(y) / N \quad (5-4)$$

を考える。この時、 N 本のステップ集団のスティフネスは、diffusivity

$$b_N = a_x^2 \langle [\sum_{i=1}^N n_i / N]^2 \rangle = a_x^2 \langle \bar{n}^2 \rangle \quad (5-5)$$

を用いて、

$$\tilde{\beta}_N = a_y kT / b_N^2(T) \quad (5-6)$$

で与えられる。 $T \rightarrow 0$ の極限を考えると、 N 本のステップ集団は、引力相互作用のため完全に合体して、キंकエネルギー $N\varepsilon$ を持つ単一ステップとして振る舞う。キंकエネルギーが ε のステップのステップスティフネスは式(2-39)で与えられるので、 $\tilde{\beta}_N$ は、 $T \rightarrow 0$ で、

$$\tilde{\beta}_N = 2 \frac{a_y}{a_x^2} kT \sinh^2 \frac{N\varepsilon}{2kT} \quad (5-7)$$

となり、バンチサイズ N に比例しない。一方、高温になると、ステップバンチはいたるところで解け始め、もはやキंकエネルギー $N\varepsilon$ を持つ単一ステップとみなすことはできない。高温の極限では、個々のステップの揺らぎが独立になるので、式(5-5)で定義されるdiffusivityは、

$$b_N^2(T) = a_x^2 \langle n^2 \rangle / N \quad (5-8)$$

となる。従って、高温極限では、スティフネス $\tilde{\beta}_N$ は、

$$\tilde{\beta}_N = N\tilde{\beta}_1 \quad (5-9)$$

となり、スティフネスはバンチサイズ N に比例する。

式(5-7)の低温での振る舞いから式(5-9)の高温での振る舞いへの移り変わりを詳しく見るため、様々な温度 T におけるスティフネス $\tilde{\beta}_N$ をモンテカルロ計算によって求めた。パラメータは、全ての計算において $\varepsilon = \varepsilon_a$ とした。このパラメータの場合、およそ $kT/\varepsilon \approx 1.15$ でステップバンチは完全に分解することが分かっており、この温度は丁度ファセッティング温度に対応するものと考えられる。図5-6にモンテカルロシミュレーションによって得られた $N = 3$ のステップバンチのスナップショットを示す。温度の上昇と共にステップバンチの分解が進んでいることが分かる。図5-7に、様々な温度における $N = 1 \sim 4$ のステップバンチのスティフネス $\tilde{\beta}_N$ の計算結果を示す。図5-7(a)は低温領域での計算結果を示しており、図中の実線は式(5-7)から計算した $\tilde{\beta}_N$ である。温度の上昇と共に $\tilde{\beta}_N$ が低温極限での式(5-7)の依存性からずれて行くことが分かる。図5-7(b)はファセッティング温度($kT/\varepsilon \approx 1.15$)付近での $\tilde{\beta}_N$ の計算結果を示してお

り、ファセッティング温度近傍ではほぼ高温極限での式(5-9)の依存性が確認される。

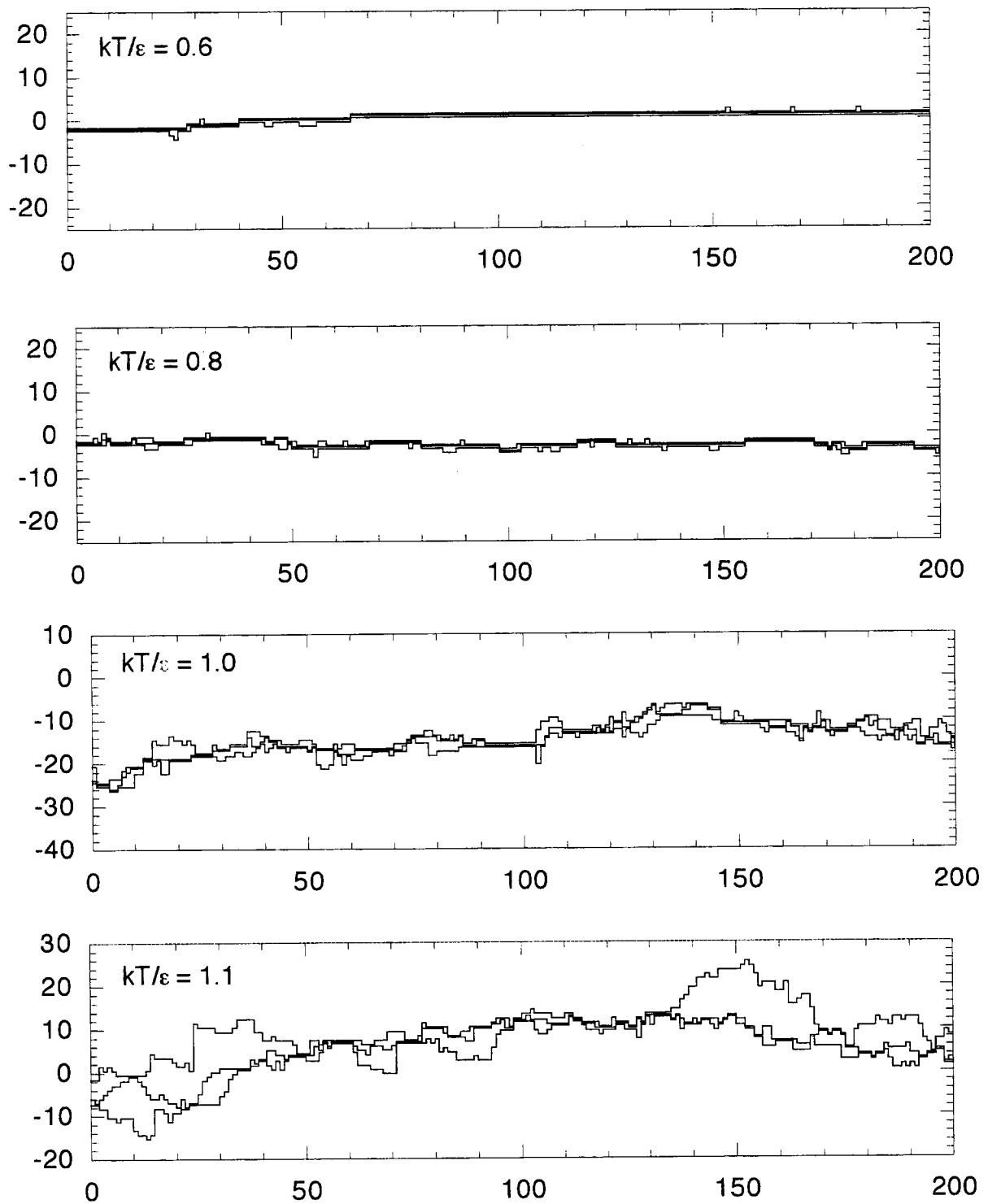


図5-6 ステップ間の短距離の引力的相互作用を考慮したTSKモデルのモンテカルロシミュレーションによって生成された3原子層ステップのスナップショット。

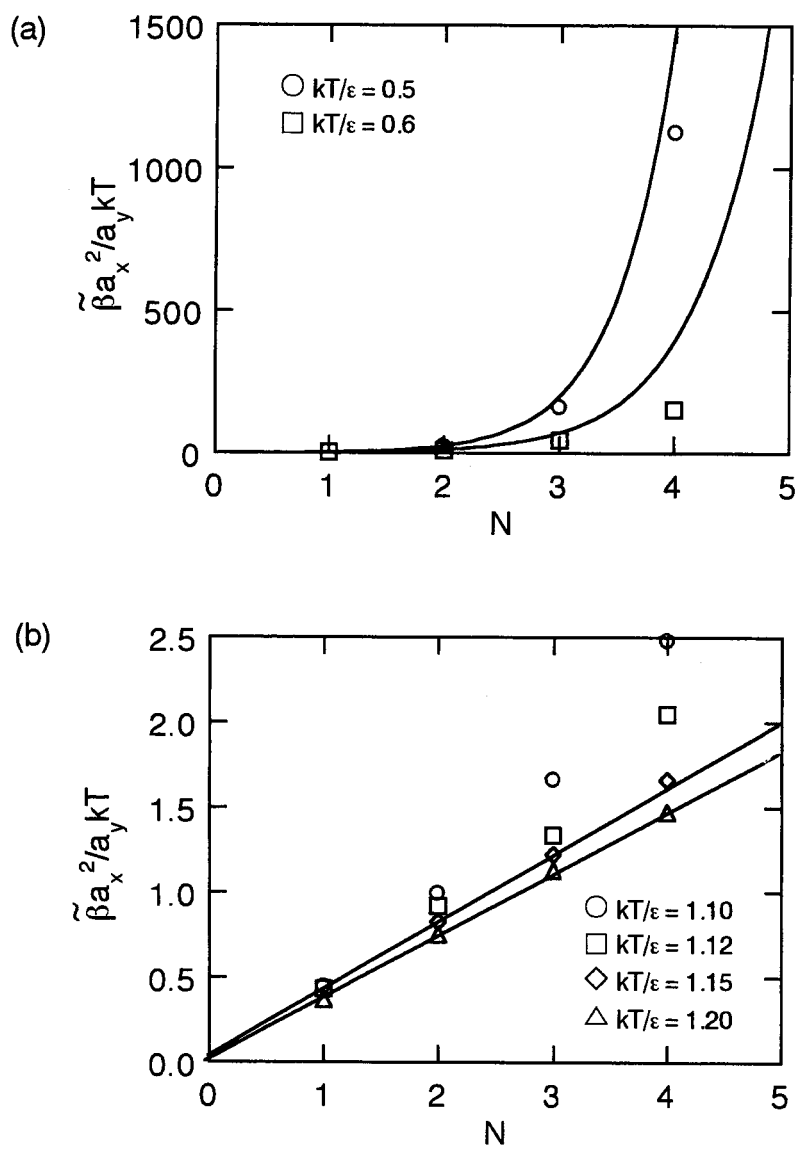


図5-7 モンテカルロ計算によって得られたステップスティフネスの N 依存性.
 (a)低温での振る舞い, (b)ファセッティング温度近傍での振る舞い.

この結果から、およそ $kT = \epsilon_s$ になるとステップバンチが容易に分解するようになり、ステップバンチに含まれる個々のステップの揺らぎの相関が小さくなり、ステップスティフネスはバンチサイズに比例するようになると考えられる。実験結果(図5-4)はファセッティング温度近傍である710°Cにおいて得られたものであり、また、図5-2のステップの高分解STM像から実際にステップバンチの分解が起こっていることが確認される。また、図5-4において、 $N=2$ のステップバンチのスティフネスの値が直線上に乗っていない。これは、図5-2(b)のSTM像からわかるように、2原子層ステップではステップ間の結合が強く、ステップの分裂がほとんど励起されないためであると考えられる。以上の事から、TSKモデルに基づいた議論によって、実験結果が定性的に理解出来ることが分かる。

5-5 まとめ

本章では、Si(113)表面上の、ファセッティング温度近傍である710°Cにおいて共存する単原子層から4原子層のステップについて、STM像からステップ相関関数を測定し、ステップスティフネスのバンチサイズ依存性を調べた。実験結果より、ステップスティフネスがほぼバンチサイズに比例していることが分かった。また、ステップ間の短距離の引力的相互作用を考慮したTSKモデルに基づいて、ステップスティフネスのバンチサイズ依存性について考察した。この議論によって、実験によって得られたステップスティフネスとバンチサイズの比例関係には、ステップバンチが熱的に分解して弱く結合していることが本質的な役割を果たしていることが明らかになった。様々な温度におけるステップスティフネスをモンテカルロ計算によって求めたところ、 kT がステップ間の引力的相互作用と同程度になるファセッティング温度付近で、ステップバンチに含まれる個々のステップの揺らぎの相関が十分に小さくなり、ステップスティフネスはバンチサイズにほぼ比例することが分かった。

参考文献

- [1] S. Song, M. Yoon, S. G. J. Mochrie, G. B. Stephenson, and S. T. Milner, *Surf. Sci.* 372, 37 (1997).
- [2] S. Song, S. G. J. Mochrie and G. B. Stephenson, *Phys. Rev. Lett.* 74, 5240 (1995).
- [3] K. Sudoh, T. Yoshinobu, H. Iwasaki and E. D. Williams, scanning microsc. (in press).
- [4] N. C. Bartelt, J. L. Goldberg, T. L. Einstein and E. D. Williams, *Phys. Rev. B* 48, 15453 (1993).
- [5] E. D. Williams, *Surf. Sci.* 299/300, 502 (1994).
- [6] W. W. Pai, N. C. Bartelt and J. E. Reutt-Robey, *Phys. Rev. B* 53, 15991 (1996).
- [7] C. Alfonso, J. M. Bermond, J. C. Heyraud and J. J. Métois, *Surf. Sci.* 262, 371 (1992).
- [8] N. C. Bartelt, R. M. Tromp and E. D. Williams, *Phys. Rev. Lett.* 73, 1656 (1994) .
- [9] J. Knall, J. B. Pethica, J. D. Todd and J. H. Wilson, *Phys. Rev. Lett.* 66, 1733 (1991).
- [10] J. Dabrowski, H. -J. Müssig, and G. Wolff, *Surf. Sci.* 331-333, 1022 (1995).

第6章 Si(113)表面におけるステップのキンクエネルギー

6-1 緒言

原子ステップの揺らぎは、原子レベルで見ると、ステップにおけるキンクの励起に起因する。従って、ステップ張力やステップスティフネス等の熱力学量は、ミクロスコピックな物理量であるキンクエネルギーによって支配される。第2章で議論したように、キンクハミルトニアン具体的な形はステップスティフネスの温度依存性や異方性に大きく影響するので、キンクハミルトニアンを実験的に決定することは重要である。

キンク同士に相互作用がなければ、キンクの長さの分布は単純にボルツマン分布に従うので、長さ $|n|$ のキンクを励起するのに要するエネルギーを $E(n)$ とすると、長さ n のキンクが存在する確率 $P(n)$ は、

$$\frac{P(|n|)}{P(0)} = 2 \exp(-E(|n|)/kT) \quad (6-1)$$

で与えられる[1]。従って、原子解像度のあるSTM像からキンクの長さの分布 $P(n)$ を測定すれば、キンクハミルトニアン $E(n)$ に関する情報を得ることができる。その具体例として、Swartzentruberら[1,2]はSi(001)表面におけるキンクの長さの分布をSTM像から測定し、キンクハミルトニアン $E(n)$ を決定している。

本章では、STM像の統計解析によってSi(113)表面の2原子層ステップのキンクハミルトニアンを評価する。式(6-1)で記述される分布 $P(n)$ は、平均的なステップの方位が結晶軸と一致する場合、すなわち $\theta = 0^\circ$ の場合に得られたものであり、ステップの方位 θ が変化すると、一般に分布 $P(n)$ は変化する。今回実験に用いた試料の場合、表面上のステップの平均方位が結晶軸から大きくずれているため、式(6-1)をそのまま適用することが出来ない。そこで、実験結果を解析するために、図6-1に示したような任意の方位のステップに対するキンクの長さの分布 $P(n)$ を導出する。キンクハミルトニアン $E(n)$ の具体的な形を仮定して方位 θ のステップに対する分布 $P(n)$ を計算し、実験で得られた分布 $P(n)$ と比較することによって、Si(113)表面上のステップのキンクハミルトニアンの具体的な形について考察する。また、実験で評価されたキンクハミルトニアンの形に基づいて、ステップ張力やステップスティフネスの異方性についても考察する。

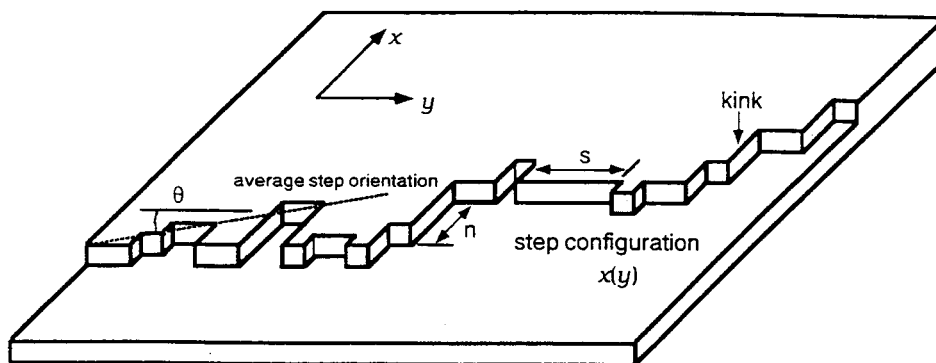


図6-1 TSKモデルにおける方位 θ のステップ。

6-2 実験

試料は、第4章および第5章の実験で用いたものと同じシリコンウエハから切り出した。第4章で述べた手順でシリコン清浄表面を得た後、試料を720°Cで10分間アニールし、室温まで急冷してからSTM観察を行った。第4章で述べたように、この時観察されるSTM像は、720°C付近の熱平衡状態における表面構造であると考えられる。STM像からキンの長さの分布を測定するため、観察時の走査範囲を130 nm × 130 nmとして高分解のSTM像を得た。

6-3 実験結果

図6-2に試料を720°Cで10分間アニールした時の表面のSTM像（250 nm × 250 nm）を示す。第4章で述べたように、表面には単原子ステップ、2原子層ステップ、3原子層ステップが共存している。平均的にステップが走る方位が結晶軸より大きく外れているので、ジグザグ構造を持つステップが観察される。

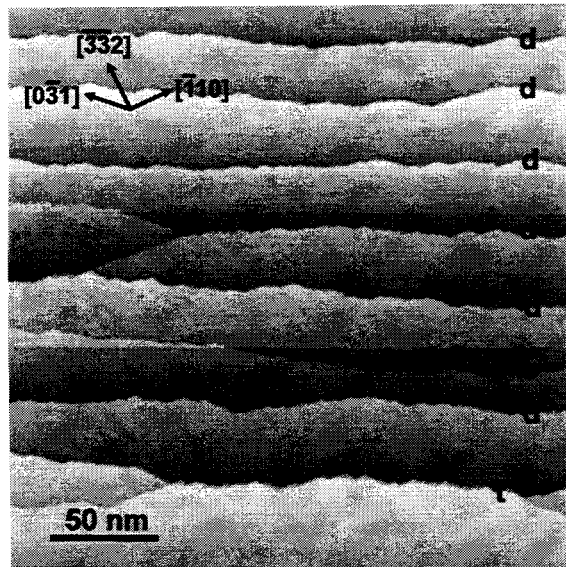


図6-2 720°Cでアニールした時の表面のSTM像(250nm×250nm).
s: single step, d: double step, t: triple step.

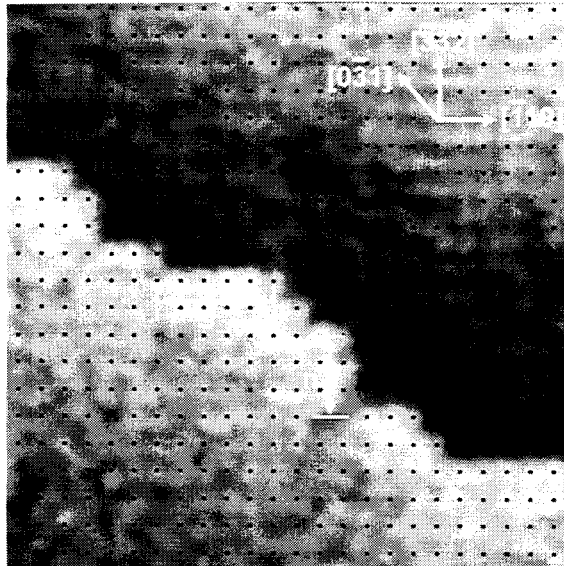


図6-3 2原子層ステップの高分解STM像(50nm×50nm).
ドットは3×2構造の周期性を示す.

図6-3は、2原子層ステップの原子分解STM像である。テラス上には(3×2)構造[3,4]が観察される。STM像上に示したドットは、(3×2)構造の周期を表わしている。STM像の輝点がドットからずれている領域は、(3×2)構造の位相のずれ、もしくは原子の配置の乱れによるものである。図6-3から、2原子層ステップのキンクの長さ及び隣接するキンクの間隔が、(3×2)構造の単位胞によって離散化されていることがわかる。[110]方向にy軸、[332]方向にx軸をとり、それぞれの方向の格子定数を a_y 及び a_x とする。この時、ステップの形状は関数 $x(y)$ によって記述され、その振る舞いはTSK描像に基づいて議論することが出来る。ここでは、特に2原子層ステップに着目し、STM像の統計解析によってキンクハミルトニアンの評価を試みる。

まず、各キンクサイトで起こる事象が独立であるかどうかを調べるために、隣接するキンクの間隔 s の分布 $P(s)$ をSTM像より求めた。図6-4に実験によって得られた $P(s)$ を示す。もし、各キンクサイトにおける事象が独立であるならば、隣接するキンクの間隔が s である確率 $P(s)$ は、

$$P(s) = P_k(1 - P_k)^{s-1} \quad (6-2)$$

によって与えられる。ここで、 P_k は各キンクサイトにおいてキンクが存在する確率である。図6-4の実線は式(6-2)から求めた分布を示しており、実験結果と良く一致していることが分かる。この事から、各キンクサイトにおける事象は独立であると考えられる。

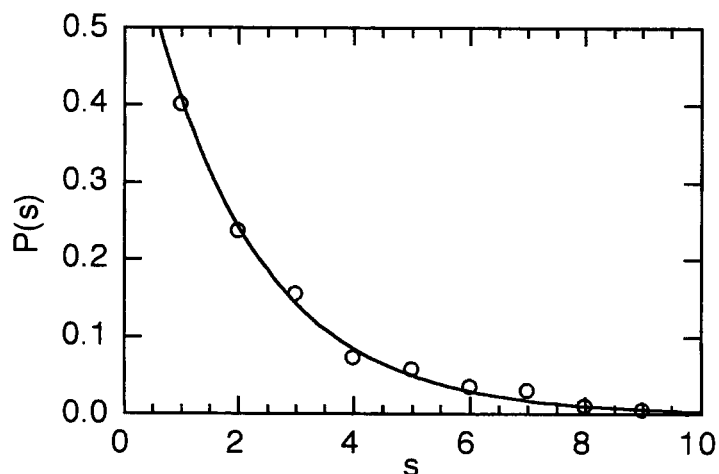


図6-4 隣接するキンク間の距離の分布。実線は式(6-2)から計算した分布。キンク間隔 s は a_y (1.15 nm)を単位としている。

次に、STM像から各キルクサイトにおいてキルクの長さ $n = x(y) - x(y+1)$ を測定しその分布 $P(n)$ を求めた。図6-5に、実験で得られたキルクの長さの分布 $P(n)$ を示す。 n の平均は0.46、分散は0.33である。 n が正の値を持つキルクと n が負の値を持つキルクは全く同じ構造を持つのでエネルギーは等しいが、今回の実験では n が負の値を持つキルクは観察されなかった。この事実は、観察された全てのキルクは、ステップの平均方位が結晶軸からずれていることによって幾何学的に強制されたものであって、熱的に励起されたものではないことを意味する。

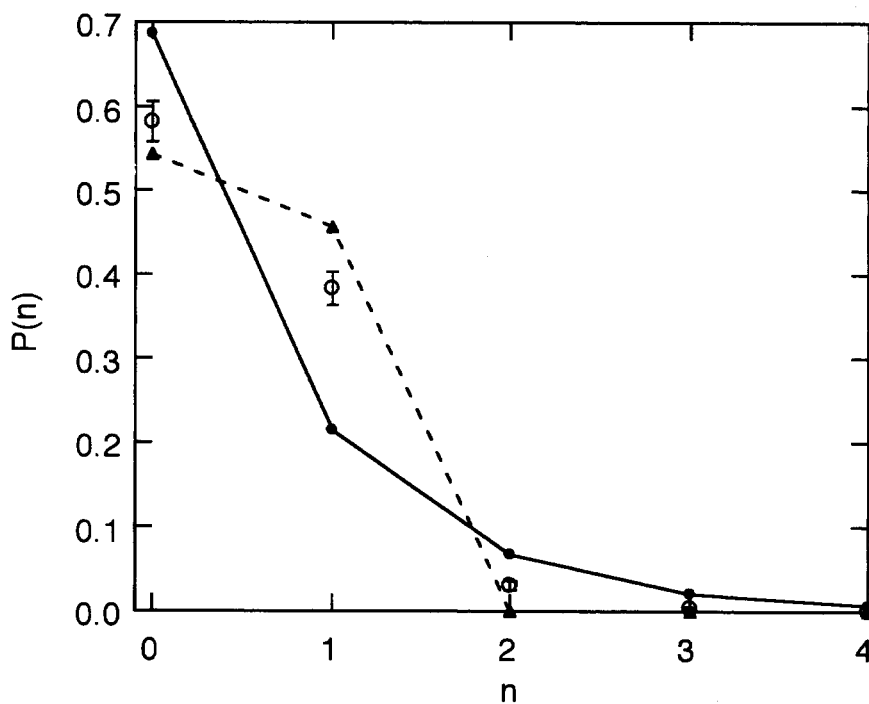


図6-5 キルクの長さの分布。キルクの長さ n は a_x (1.28nm) を単位とする。
 (○) 実験結果, (●) TSKモデル ($T=0$), (▲) $E(n \geq 2) > 2E(1)$ の場合 ($T=0$)。

6-4 考察

6-4-1 キンクハミルトニアンの評価

TSKモデルにおいて任意の方位のステップの振る舞いを議論するとき、キンク化学ポテンシャル μ を導入するのが便利である[5]。キンク間に相互作用がない場合には、各キンクサイトにおける大分配関数を求めればよい。各キンクサイトにおける大分配関数 q は、

$$q(T, \mu) = \sum_n \exp \left\{ \left[-E(n) + \mu n \right] / kT \right\} \quad (6-3)$$

によって与えられる。ここで、 $E(n)$ は長さ $|n|$ のキンクのエネルギーである。ステップが走る平均的な方位 ρ は、

$$\rho = \tan \theta = a_x \langle n \rangle / a_y \quad (6-4)$$

によって決まる。ここで、 n の期待値 $\langle n \rangle$ は、大分配関数 q を用いて、

$$\langle n \rangle = kT \frac{\partial}{\partial \mu} \ln q \quad (6-5)$$

によって計算される。式(6-5)を用いれば、キンク化学ポテンシャル μ をステップの方位 ρ の関数として得ることが出来る。従って、 $\rho = \rho_0$ のステップに対して、キンクの長さの分布 $P(n)$ は、

$$P(n) = \frac{\exp \left\{ \left[-E(n) + \mu(T, \rho_0) n \right] / kT \right\}}{q} \quad (6-6)$$

によって計算出来る。

式(6-6)から分かるように、キンクハミルトニアン $E(n)$ の具体的な形によって分布 $P(n)$ は変化する。まず、単純にキンクエネルギーがキンクの長さに比例して増加する場合を考える。この場合、キンクハミルトニアンは、

$$E(n) = \varepsilon |n| \quad (6-7)$$

で与えられる。式(6-7)および式(6-3)~(6-5)を用いると、

$$\exp \left(\frac{\mu}{kT} \right) = \frac{\langle n \rangle (1 + z^2) + \sqrt{A}}{2z(\langle n \rangle + 1)} \quad (6-8)$$

の関係が得られる。ここで、

$$z = \exp(-\varepsilon/kT)$$

$$A = \langle n \rangle^2 (1 + z^2)^2 - 4z^2(\langle n \rangle^2 - 1)$$

である。図6-6は、式(6-6)と式(6-8)を用いて計算した $\langle n \rangle = 0.46$ (○) と $\langle n \rangle = 0$ (●) の場合の分布 $P(n)$ を比較している。高温では、 $\langle n \rangle = 0.46$ と $\langle n \rangle = 0$ の場合で分布はそれほど違わないが (図6-6(a))、温度が低くなるにつれその違いが顕

著になることが分かる(図6-6(b), (c))。 $\langle n \rangle \neq 0$ の場合、幾何学的に強制的に作られるキックが存在するので、 n が正のキックと n が負のキックの数は等しくならず、分布は n の正負で対称にならない。高温では、 $\langle n \rangle > 0$ であっても十分多数の $n < 0$ のキックが熱的に励起されるため分布はほとんど対称になるが、温度が下がると熱的に励起されていた $n < 0$ のキックの出現が抑制されるので、分布は n が正の側に片寄ることになる。 $T \rightarrow 0$ の極限では、 $n < 0$ のキックは完全に消失し分布は、

$$\begin{aligned} P(n) &= \binom{n}{n} / \left(\binom{n}{n} + 1 \right)^{n+1} & \text{for } n \geq 0 \\ P(n) &= 0 & \text{for } n < 0 \end{aligned} \quad (6-9)$$

となる。図6-5の実線は、 $\langle n \rangle = 0.46$ の時に式(6-9)を用いて計算した分布 $P(n)$ を示している。これを実験結果と比較すると、実験で得られた $P(n)$ では $n \geq 2$ のキックの出現が抑制されており、 $n=1$ のキックがより支配的である。 $E(n) = \varepsilon|n|$ の場合、式(6-9)から分かるように $T = 0$ であっても $n \geq 2$ のキックが存在する。しかし、 $E(n \geq 2) > 2E(1)$ の場合には、低温での分布は $E(n) = \varepsilon|n|$ の場合と異なり、 $n=1$ のキックが支配的になる。 $T \rightarrow 0$ の極限では、全てのキックが $n = 1$ となり、分布は

$$\begin{aligned} P(0) &= 1 - \langle n \rangle \\ P(1) &= \langle n \rangle \\ P(n) &= 0 & n = 0, 1 \text{ 以外} \end{aligned} \quad (6-10)$$

となる。図6-5の破線は式(6-10)の分布を示す。 $T = 0$ における式(6-9)および式(6-10)の分布を実験結果と比較すると、Si(113)表面の2原子層ステップでは $E(n \geq 2) > 2E(1)$ であると結論できる。Si(001)表面の場合、キックの角の部分がエネルギーを持つことが知られているが[1]、このコーナーエネルギーの存在は n の大きいキックの出現確率を高くするので、コーナーエネルギーがあるとすると明らかに実験結果を再現しない。

図6-5に示した結果では、 $P(n=3) = 0.004 \pm 0.001$ であるので、 $n \geq 3$ のキックの存在は無視することが出来る。そこで、 $|n| \leq 2$ のキックのみが許されるモデルを考える。すなわち、 $E(n \leq 2)$ は有限であり、 $E(n \geq 3)$ は無限大とする。実験結果を再現するパラメータ $E(1)/kT$ および $E(2)/kT$ を決定するため、式(6-3)~(6-6)を用いて数値的に分布 $P(n)$ を計算した。 $E(1)$ と $E(2)$ の比が $2.0 < E(2)/E(1) < 2.7$ の範囲にあるとき、有限の温度において実験結果と良く一致する分布が得られた。キックハミルトニアンに関してこれ以上の詳細な情報が得られなかったのは、温度が低いため十分多数のキックが熱的に励起されておらず、統計的に十分な精度が得られなかったためである。

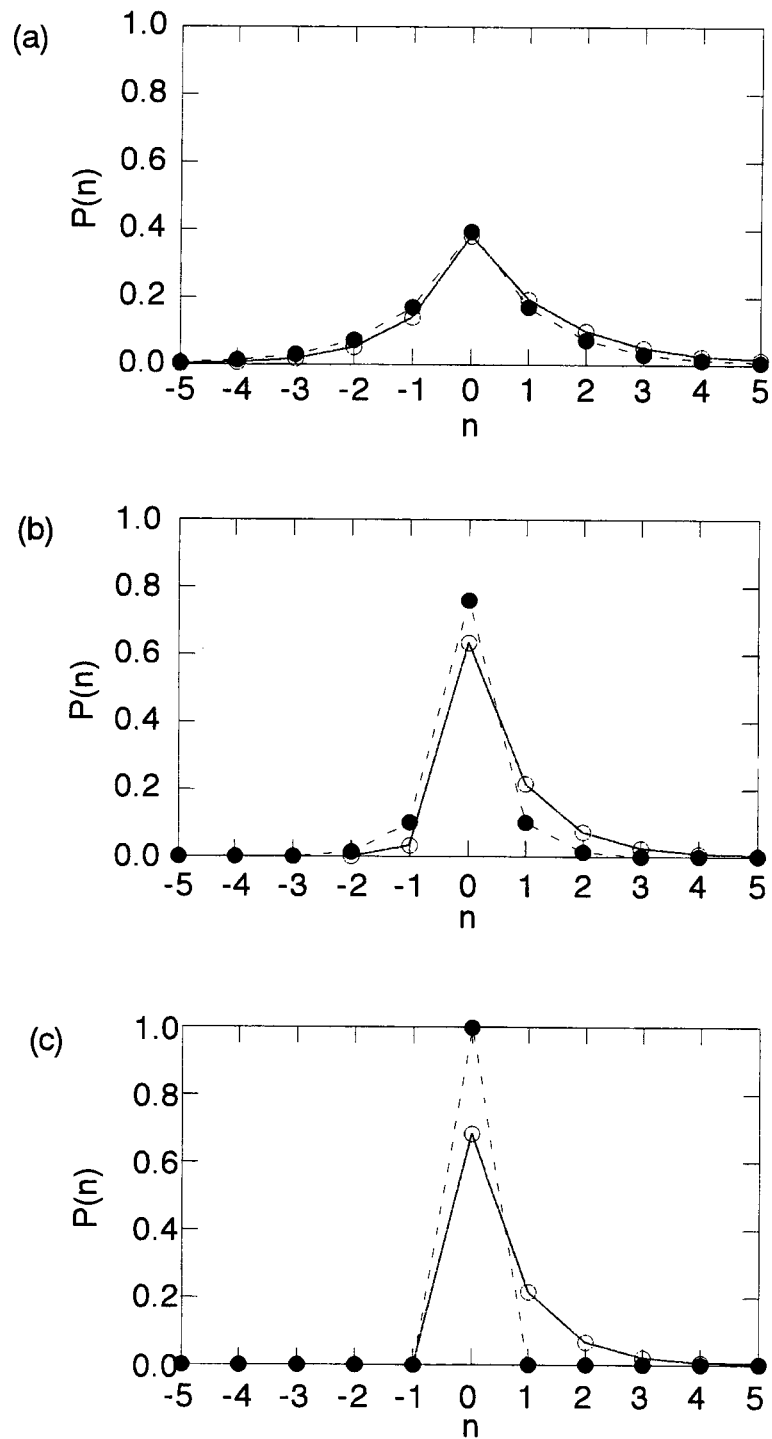


図6-6 TSKモデルにおける分布 $P(n)$ の温度依存性.

(a) $kT/\varepsilon = 1.2$, (b) $kT/\varepsilon = 0.5$, (c) $kT/\varepsilon = 0.1$. (○) $\langle n \rangle = 0.46$, (●) $\langle n \rangle = 0$.

6-4-2 ステップ張力の異方性

ステップ張力 $\beta(\theta)$ およびステップスティフネス: $\tilde{\beta}(\theta) = \beta(\theta) + \partial^2 \beta(\theta) / \partial \theta^2$ の異方性は、平衡状態における表面形状[6-9]や結晶成長時の表面形状[10]を議論する場合に重要となる。これらの熱力学量は、微視的な観点に立つとキンクエネルギーによって支配されていると考えられる。図6-7は、異なるキンクハミルトニアンを用いてモンテカルロシミュレーションによって生成したステップのスナップショットである。左側の列は、普通のTSKモデル、右側の列はRTSK (restricted TSK) モデルを用いている。RTSKモデルのキンクハミルトニアンは、 $E(0) = 0$, $E(|n|=1) = \epsilon$, $E(|n| \geq 2) = \infty$ である[5]。すなわち、 $|n| \geq 2$ のキンクの存在が禁止されている。この図から分かるように、キンクハミルトニアンの具体的な形はステップの形状や揺らぎに大きく影響する。ここでは、前節までの議論で明らかになったSi(113)表面上の2原子層ステップのキンクハミルトニアンの形に基づいて、ステップ張力およびステップスティフネスの異方性について考察する。ステップスティフネスはdiffusivity:

$$b^2(\theta, T) = a_x^2 \langle (n - \langle n \rangle)^2 \rangle \quad (6-11)$$

を用いて、

$$\tilde{\beta}(\theta, T) = \frac{a_y kT}{b^2(\theta, T) \cos^3 \theta} \quad (6-12)$$

によって求めることが出来る[5]。実験結果から、 $b^2 = 0.55 \text{ nm}^2$ が得られるので、解析に用いたSTM像が720°Cにおける平衡状態の表面形状を表わしていると仮定すれば、 $\tilde{\beta}(\theta = 27^\circ, T = 720 \text{ C}^\circ)$ はおよそ26 meV/Åと評価される。

Wulffの定理[6,7]に従えば、ステップ張力 $\beta(\theta)$ を極座標プロットしたときにカuspとなる方位のステップは熱力学的に安定である。前節で議論したTSKモデル、すなわち $E(n) = \epsilon |n|$ の場合には、 $|\theta| < 90^\circ$ の範囲でカuspの存在する方位は $\theta = 0^\circ$ のみである。一方、実験で得られた $E(n \geq 2) > 2E(1)$ の場合には、単位長さ当たりのステップエネルギーは、

$$\begin{aligned} \beta(\theta, T=0) &= \beta(0,0) |\cos \theta| + \frac{E(1)}{a_x} |\sin \theta| && \text{for } \tan \theta \leq a_x/a_y \\ \beta(\theta, T=0) &= \beta(0,0) |\cos \theta| + \frac{E(2) - E(1)}{a_x} |\sin \theta| \\ &\quad - \frac{a_x(E(2) - 2E(1))}{a_y} |\cos \theta| && \text{for } \tan \theta > a_x/a_y \end{aligned} \quad (6-13)$$

となる。式(6-13)より、 $\tan \theta = a_x/a_y$ でステップエネルギーの微分が不連続になっていることが分かる。従って、 $E(n) = \epsilon |n|$ の場合と異なりステップ張力は $\theta = 0^\circ$ だけでなく、 $\tan \theta = a_x/a_y$ においてもカuspが存在することが期待される。この

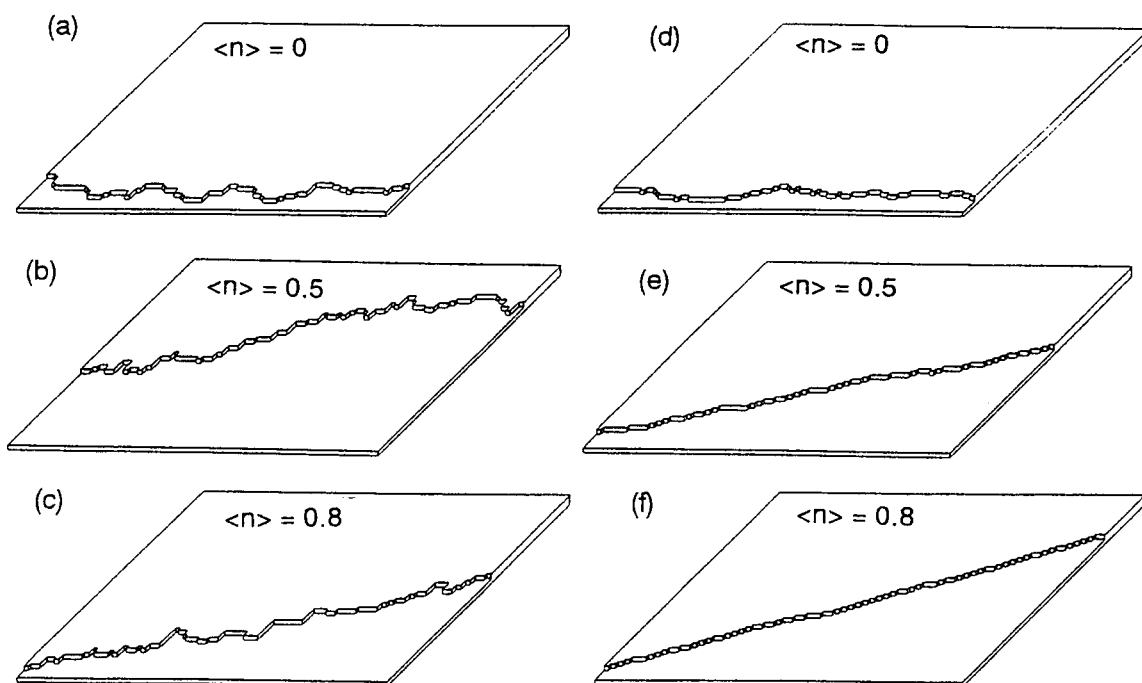


図6-7 モンテカルロシミュレーションによって生成されたステップ.

(a)-(c) simple TSK model, (d)-(f) restricted TSK model.

パラメータは $kT/\varepsilon = 1.0$ とした.

事は、 $E(n \geq 2) > 2E(1)$ の最も極端な場合であるRTSKモデルにおけるステップの振る舞いからも容易に予想される。図6-7から分かるように、RTSKモデルでは、 $|n| \geq 2$ のキンクの出現が禁止されているため、 $\tan \theta = a_x/a_y$ 付近のステップは揺らぎが抑制され、 $\tan \theta = a_x/a_y$ でスティフネスが発散する。 $\tan \theta = a_x/a_y$ は(113)面上の $[0\bar{3}1]$ 方向に対応しており、Si(113)表面では $[0\bar{3}1]$ に沿ったステップも安定であると考えられる。実際に図6-1のSTM像において $[0\bar{3}1]$ に沿ったステップがしばしば観察されることから、以上の議論は妥当であると考えられる。

6-5 まとめ

本章では、Si(113)表面上の2原子層ステップの原子分解STM像からキンクの長さの分布を測定し、統計的な解析を行った。以前SwartzentruberらがSi(001)表面上のステップのキンク分布の解析に用いた理論は、平均的なステップの方位が結晶軸の方位と一致する場合にのみ適用可能であり、ステップの平均方位が結晶軸から大きくずれている試料の解析には直接適用することができない。そこで、TSKモデルを用いて任意の方位のステップに対するキンク分布を導出した。実験結果を理論予測と比較したところ、Si(113)表面上の2原子層ステップのキンクエネルギー $E(n)$ は単純にキンクの長さには比例せず、 $E(n \geq 2) > 2E(1)$ であることが分かった。数値計算によって比 $E(2)/E(1)$ を評価したところ、 $2.0 < E(2)/E(1) < 2.7$ 程度であることが分かった。また、キンクハミルトニアン H の形と表面張力の異方性の関係について論じた。Si(113)表面上のステップのキンクハミルトニアンは $E(n \geq 2) > 2E(1)$ であることから、 $[\bar{1}10]$ 方向のステップだけでなく $[0\bar{3}1]$ に沿ったステップも熱的に安定であることが期待される。この事実は、実験的なステップの観察結果とも一致する。

参考文献

- [1] B. S. Swartzentruber, Y. -W. Mo, R. Kariotis, M. G. Lagally and M. B. Webb, Phys. Rev. Lett. 65 1913, (1993).
- [2] B. S. Swartzentruber and M. Schacht, Surf. Sci. 322, 83(1995).
- [3] J. Knall, J. B. Pethica, J. D. Todd and J. H. Wilson, Phys. Rev. Lett. 66, 1733 (1991).
- [4] J. Dabrowski, H. -J. Müssig and G. Wolff, Surf. Sci. 331-333, 1022 (1995).
- [5] N. C. Bartelt, T. L. Einstein and E. D. Williams, Surf. Sci. 276, 308 (1992).
- [6] G. Wulff and Z. Kristallogr, Mineral. 34 (1901) 449.
- [7] C. Herring, Phys. Rev. 82 (1951) 87.
- [8] N. Akutsu and Y. Akutsu, Surf. Sci. 376 (1997) 92.
- [9] N. Akutsu and Y. Akutsu, Phys. Rev. B 57 (1998) R4233.
- [10] H. Müller-Krumbhaar, T. W. Burkhardt and D. M. Kroll, J. Cryst. Growth. 38 (1977) 13.

第7章 総括

本研究では、原子ステップを単位とした熱力学・統計力学理論を基礎として、超高真空走査型トンネル顕微鏡 (UHV-STM) を用いてシリコン表面における原子ステップの挙動を実験的・理論的に研究した。以下、本研究によって得られた知見と今後の研究課題について述べる。

第2章では、本研究において基礎となる表面界面形状の熱力学・統計力学について概説した。特に、原子ステップを単位として構築された理論が、表面の熱力学的性質を理解するうえで有効であることを示した。

第3章では、粗視化されていない微視的なSOS (solid-on-solid) モデルのモンテカルロシミュレーションを行い、微斜面のステップ相関関数および高さ相関関数を計算した。粗視化された表面モデルである自由フェルミオンモデルおよびTSKモデルの場合と同様、これらの相関関数は距離に対して対数的に発散することが確認された。さらに、TSK (terrace-step-kink) 描像と表面張力波描像から予測される長距離での高さ相関関数とステップ相関関数の間の比例関係が、モデルの詳細に依存せず非常に一般的に成立していることが今回のシミュレーションで明らかとなった。

第4章では、 $[332]$ から $[\bar{1}10]$ に向かって $\theta = 57^\circ$ の対称性の低い方向に $\phi = 1.7^\circ$ 傾斜したSi(113)微斜面におけるファセッティングをSTMを用いて調べた。まず、表面形状の温度依存性を調べるため、試料のアニール温度を変えて表面のSTM観察を行った。その結果、この表面のファセッティング温度は約 720°C であり、以前に調べられている $\theta = 0^\circ$ の方向に傾斜した微斜面のファセッティング温度と比較すると著しく低いことが明らかとなった。また、ファセッティングが起こる温度領域で、アニール時間を変えて表面のSTM観察を行い、表面形状のアニール時間依存性を調べた。その結果、ファセッティングの過程において、平均テラス幅はアニーリング時間に対してべき則に従って増加しており、その指数がほぼ $1/6$ であることが明らかになった。このスケーリング指数の値は、 $\theta = 0^\circ$ の微斜面で得られている値と同じであることから、ミクロスコピックな表面形状とは関係なく、ステップ間に短距離の引力的相互作用が働く系に特徴的なものであると考えられる。試料の加熱に用いた通電の表面形状への影響も調べたが、表面形状は通電の影響を受けておらず、観察された表面は、熱平衡状態もしくは平衡状態への緩和過程にある表面形状であることが確認された。

第5章では、Si(113)表面上のステップおよびステップバッチのナノメートルスケールでの揺らぎについて定量的に調べた。 710°C での熱平衡状態にあるSi(113)表面上で

共存する1原子層から4原子層の高さのステップについて、STM像よりステップ相関関数を測定し、ステップの高さとステップの固さの度合を示す物理量であるステップスティフネスの関係について調べた。その結果、ステップスティフネスがステップの高さにほぼ比例していることが明らかになった。実験結果の定性的な理解を得るため、ステップ間の短距離の引力的相互作用を考慮したTSKモデルに基づいた考察を行った。その結果、実験で得られたステップスティフネスとステップの高さの間の比例関係は、ステップバンチの熱的な分解が容易に起こるファセッティング温度近傍での振る舞いであることが明らかとなった。実験結果はファセッティング温度近傍で得られたものであり、STM像において、実際にステップバンチの部分的な分解が観察されていることから、ここで行った考察は妥当であると考えられる。

第6章では、原子レベルの観点からステップの揺らぎについて考察した。ステップの揺らぎは、微視的に見るとステップでのキンクの形成に起因する。そこで、高分解STM像よりSi(113)表面上の2原子層ステップにおけるキンクの長さ n の分布を測定し、キンクエネルギーのキンクの長さ n 依存性 $E(n)$ を評価した。一般的にキンク分布の解析に用いられている理論は、ステップの走る方位が結晶軸方向と一致している対称性の高いステップの場合にのみ適用可能であり、実験で用いた試料の場合ステップの走る方位が結晶軸の方向と大きく異なるため直接適用することが出来ない。そこで、任意の方位のステップにおけるキンク分布の解析が行えるように、理論を拡張した。実験結果と理論予測の比較より、Si(113)表面上のステップの場合、キンクエネルギーが単純にキンクの長さに比例しておらず、 $E(n \geq 2) > 2E(1)$ であることが明らかとなった。このことから、Si(113)表面において $[0\bar{3}1]$ 方向に沿ったステップが熱的に安定であることが分かり、STM像で観察されるステップの形状と定性的に一致する。

以上のように、本研究ではSi(113)表面の形状や原子ステップの熱力学的性質をSTMを用いて調べた。その結果、結晶表面上の原子ステップの挙動の解明が、表面・界面の形態を理解するうえで非常に有効であることが明らかとなった。しかし、Si(113)表面形状の性質には、明らかにされていない点も多く残っている。ファセッティング温度は、微斜面の傾斜方位に依存して変化することが明らかになったが、その物理的機構は、引力的相互作用の生じる機構とともに十分に理解されていない。この点については、表面の傾斜方向の異なる試料について系統的な実験を行うことが必要である。また、ファセッティングの過程において、平均テラス幅はアニール時間に対して指数 $1/6$ のべき則に従って増加するが、この関係がどの程度まで一般的に成立しているのか、またスケーリング指数 $1/6$ の持つ物理的な意味については、十分

に明らかにされていない。この様なファセッティングのカイネティクスに関する問題点については、STM等を用いてファセッティング過程における表面形状の変化を直接観察することで、より深い知見が得られると考えられる。

本研究では、結晶表面の熱平衡状態における形態の現象論的な理解を深めることができたが、将来的には量子力学に基づいた解析とあわせて、物質固有の性質を正しく反映する理論的枠組みが構築されることが期待される。また、こうした研究の進展とともにステップの挙動に関する理解が深まれば、エッチング、ホモエピタキシャル成長、ヘテロエピタキシャル成長等の表面プロセスによって形成されるメゾスコピックスケールでの表面形状の予測が可能となり、半導体マイクロ・ナノデバイスプロセスの発展に大きく寄与すると考えられる。

謝辞

本研究は、岩崎裕教授の御指導のもと大阪大学工学研究科応用物理学専攻において行われたものである。本研究を遂行するにあたり、終始懇切な御指導を賜りました大阪大学産業科学研究所教授 岩崎裕先生に心より厚く御礼申し上げます。

本学大学院工学研究科教授 川上則雄先生、本学大学院工学研究科助教授 笠井秀明先生、本学大学院工学研究科助教授 小松雅治先生、本学大学院工学研究科講師 斎藤誠慈先生には、本論文作成にあたり詳しく御検討いただき、貴重な御教示を賜りました。ここに厚く御礼申し上げます。

本学産業科学研究所講師 吉信達夫先生、同助手 李楠先生には実験技術を御教示頂き、また終始有益な御指導を賜りました。ここに、深く感謝いたします。

メリーランド大学教授 Ellen D. Williams先生には本研究を遂行するにあたり、共同研究者として大変貴重な御助言、御教示と暖かい激励を頂きました。ここに深く感謝いたします。

大阪電気通信大学工学部助教授 阿久津典子先生、本学理学部教授 阿久津泰弘先生、群馬大学工学部助教授 山本隆夫先生には、第3章で行ったシミュレーションに関して貴重な御助言、御教示を賜りました。ここに深く感謝いたします。

本学工学研究科講師 白永煥先生には、本研究で行った実験を始めるにあたり、実験装置の使用法や実験技術全般について有益な御指導を頂きました。心より感謝いたします。

本学産業科学研究所助手 中田芳幸先生には本研究で用いた試料のX線回折による評価をして頂きました。ここに深く感謝いたします。

日々の研究生活において様々な御助言と御指導を頂きました近藤英之博士（現 三菱マテリアルシリコン）、岩本篤博士（現 松下技研）、上田正則博士（本学産業科学研究所研究員）に深く感謝いたします。中尾基博士（現 堀場製作所）、井上信治氏（現 島津製作所）には暖かい励ましを頂きました。ここに、深く感謝いたします。実験を共にして頂いた大学院博士前期課程 植田直忠氏、川本一平氏に感謝いたします。

本研究を進めるにあたり、事務的な手続き等で大変お世話になりました研究室秘書 河村陽子様心より感謝いたします。

最後に、大学院博士後期課程 文元鐵氏をはじめ、研究室の皆様には研究ならびに日常生活で大変お世話になりました。ここに記して謝意を表します。

業績リスト

原著論文

1. K. Sudoh, T. Yoshinobu, H. Iwasaki, N. Akutsu, Y. Akutsu and T. Yamamoto:
“Fluctuations of a Single Step and Surface Height on Vicinal Surfaces”
J. Phys. Soc. Jpn. 65, 988-991 (1996).
2. K. Sudoh, T. Yoshinobu, H. Iwasaki and E. D. Williams:
“Dynamics of Faceting on Vicinal Si(113) Studied by STM”
Scanning Microscopy, (in press).
3. K. Sudoh, T. Yoshinobu, H. Iwasaki and E. D. Williams:
“Step Fluctuations on Vicinal Si(113)”
Phys. Rev. Lett. 80, 5152-5155 (1998).
4. K. Sudoh, T. Yoshinobu and H. Iwasaki:
“Scanning Tunneling Microscopy Study of Faceting on Vicinal Si(113)”
Jpn. J. Appl. Phys. 37, 5870-5874 (1998).
5. K. Sudoh, T. Yoshinobu and H. Iwasaki:
“Statistical Analysis of Step Meandering on Si(113) Miscut along a Low Symmetry
Azimuth”
Surf. Sci. 419, 128-133 (1999).

国際会議発表

1. K. Sudoh, T. Yoshinobu, H. Iwasaki and E. D. Williams:
“Dynamics of Step Bunching and Faceting on Vicinal Si(113) Studied by STM”
Scanning Microscopy 1997 Meeting, Marriot Downtown, Chicago, IL, USA (May,
1997).
2. K. Sudoh, T. Yoshinobu, H. Iwasaki and E. D. Williams:
“Dynamics of Faceting on Vicinal Si(113) Surfaces”
4th International Symposium on Atomically Controlled Surfaces and Interfaces, Waseda
Univ. Tokyo, Japan (October, 1997).