

# 表面拡散の異方性と吸着原子のドリフト によるステップバンチング

## Drift-Induced Step Bunching with Anisotropic Surface Diffusion

佐藤正英, 上羽牧夫\*<sup>1</sup>, 齋藤幸夫\*<sup>2</sup>

金沢大学理学部計算科学科, \*<sup>1</sup> 名古屋大学理学研究科, \*<sup>2</sup> 慶應義塾大学理工学部物理学科

Masahide Sato, Makio Uwaha\*<sup>1</sup> and Yukio Saito\*<sup>2</sup>

Department of Computational Science, Kanazawa University

\*<sup>1</sup> Department of Physics, Nagoya University

\*<sup>2</sup> Department of Physics, Keio University

(received for publication January 8, 2002)

By carrying out Monte Carlo simulation, we study step bunching induced by drift of adatoms with anisotropic surface diffusion. In our model, like a Si(001) vicinal face, two types of terraces appear alternately. One is the terrace with fast diffusion parallel to the step and the other is the terrace with fast diffusion perpendicular to the step. When the drift is perpendicular to the steps, the step pairing occurs irrespective of the drift direction. And large bunches appear in a late stage, which qualitatively agrees with the experiments. However, bunching features in the steady stage vary with the drift direction.

### §1 はじめに

微斜面でのステップの不安定化の一つに、等間隔なステップ列が不安定になってステップが束状になるバンチングがある。シリコンでは試料を直流電流で加熱することにより(111)微斜面と(001)微斜面でバンチングが生じる。シリコン(111)微斜面でのバンチングの場合には、試料の温度を決めてしまえば、バンチングを起こす電流の方向がステップ列の下段方向か上段方向のいずれか一方に決まってしまう<sup>1)</sup>。これに対して、(001)微斜面では(111)微斜面の場合とは異なり、電流がどちらを向いていてもバンチングが生じることが報告されている<sup>2-4)</sup>。

シリコン(001)微斜面と(111)微斜面の違いの一つに(001)微斜面での表面再構成が挙げられる。(001)面では表面再構成により表面上の結晶原子がダイマー(dimer)をつくることが知られている。(001)面から[110]方向に傾いた単原子層ステップからなる微斜面では、ステップに対してダイマーが垂直な方向に並んでいる1×2構造のテラスと、ステップに対してダイマーが平行に並んでいる2×1構造のテラスとが交互に現れる。

ダイマー列ができることによる効果の一つに、吸着原子の拡散に異方性が生じることが挙げられ

E-mail : sato@cs.s.kanazawa-u.ac.jp

金沢大学理学部計算科学科  
〒920-1192 金沢市角間町

Department of Computational Science, Kanazawa University  
Kakuma-machi, Kanazawa 920-1192

名古屋大学理学研究科  
〒464-8601 名古屋市千種区不老町  
Department of Physics, Nagoya University  
Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya, 464-8601

慶應義塾大学理工学部物理学科  
〒223-8522 横浜市港北区日吉 3-14-1  
Department of Physics, Keio University  
3-14-1 Hiyoshi, Kohoku-ku, Yokohama 223-8522

る。ダイマー列に沿った拡散の方が容易であると考えられるので、 $1 \times 2$  構造のテラスではステップに垂直な方向への表面拡散が容易であり、 $2 \times 1$  構造のテラスではステップに平行な方向への表面拡散が容易である<sup>5,6)</sup>。したがって、(001)微斜面では拡散の容易な方向が $90^\circ$ 異なる2つのテラスが交互に現れる。バンチングが起きるとステップの束と広いテラスが現れる。ステップの束と束の間の広いテラスの種類は電流の向きにより変化し、電流がステップ下段方向を向いているときには、ステップに垂直な方向の拡散が速い $1 \times 2$  構造のテラスが広がって、電流がステップ上段方向を向いているときには、ステップに平行な方向の拡散が速い $2 \times 1$  構造のテラスが広がる。

シリコンでのバンチングの原因は吸着原子のドリフト流であると考えられている。有効電荷をもった吸着原子が加熱のときに用いる電流によって力を受け、吸着原子のドリフト流が生じると考えられている<sup>7)</sup>。表面拡散の異方性とドリフト流を考慮した1次元ステップ流(step flow)モデルを用いて、シリコン(001)微斜面の安定性が調べられている<sup>8)</sup>。ドリフト流がステップに対して垂直に流れているときには、ドリフト流の向きがどちらであってもステップ対がつくられる。しかし、ドリフト流の向きとともにテラスの種類は変化して、ドリフト流が下段方向を向いているときにはステップに垂直な方向の拡散が速いテラスが広がり、ドリフト流が上段方向を向いているときにはステップに垂直な方向の拡散が遅いテラスが広がる。電流の方向がドリフトの方向と同じならば、広がるテラスの種類は実験と一致する。しかし、安定性を調べた<sup>8)</sup>だけでは、実験で観察されているステップの束<sup>2-4)</sup>ができるかどうかはわからない。

ステップ対ができたあとのステップの振舞いは、1次元ステップ流モデルの数値シミュレーションにより調べられている。上段方向のドリフト流では大きなステップの束ができるが、下段方向のドリフト流では束ができないことが報告されており<sup>9,10)</sup>、実験<sup>2-4)</sup>とは一致しない。シミュレーション<sup>9,10)</sup>で用いたモデルには、表面拡散の異方性のほかにステップカイネティクスの非対称性、吸

着原子の蒸発が取り入れられているので、何が実験との違いを生じさせているのかは明らかではない。

ここでは単純に拡散のモデルだけを考慮にいったモデルでモンテカルロ・シミュレーションを行い、ステップ・バンチングについて調べることにする<sup>11)</sup>。また、1次元ステップ流モデルの数値シミュレーションでは、ステップを飛び越した拡散が禁止されたいわゆる非透過性ステップのモデルを用いているが、ここではこの拡散を許した透過性ステップのモデルを用いる。

## §2 モデル

以下では、話を単純化するために立方格子結晶の微斜面を考える。格子の長さは $a=1$ とする。ステップは $x$ 軸に平行でステップ下段の方向に $y$ 軸をとることにする。 $x$ 方向には周期的境界条件を用い、 $y$ 方向には高さをステップの数だけずらしてつなげる螺旋的周期境界条件を用いる。Solid-on-Solid型のステップを用い、ステップの位置は $x$ の一価関数で与えられるようにする。ステップ間の長距離相互作用は考えないこととするが、実験<sup>2-4)</sup>では、ステップが完全に重なってテラスが消えてしまうことはみられていないので、2原子層以上の高さのステップができることはないものとする。

モデルでは固体原子と吸着原子を分けてそれぞれの運動を考える。吸着原子については拡散およびステップの下側に接したときに固化が起きうるとし、固体原子についてはステップを構成している原子の融解が起きうるとする。テラス上での2次元核や2次元穴の生成、また吸着原子の蒸発や気相からの原子の入射はないものとする。

ダイマー列による拡散の異方性とドリフト流の効果は、吸着原子が隣接する格子へ移動するときの遷移確率の異方性として表すことにする。拡散の異方性により $y$ 方向へ吸着原子の移動が容易であるテラス(以下ではテラスAと呼ぶ)と $x$ 方向への移動が容易であるテラス(以下ではテラスBと呼ぶ)が交互に現れるとする。ドリフト流がステップに対して垂直に流れている場合を考えるこ

とにする。拡散が速い方向への拡散係数を1とするような単位系を用いると、テラスAでは格子点 $(i, j)$ から $(i \pm 1, j)$ への遷移確率は $p/4$ となり、 $(i, j \pm 1)$ への遷移確率は $(1 \pm Fa/k_B T)/4$ となる。 $p$ は拡散の異方性を表わすパラメータで $|p| < 1$ であり、 $F$ はドリフト流を引き起こす力である(ただし、 $Fa/k_B T \ll 1$ )。また、テラスBでは格子点 $(i, j)$ から $(i \pm 1, j)$ への遷移確率は $1/4$ であり、 $(i, j \pm 1)$ への遷移確率は $p(1 \pm Fa/k_B T)/4$ となる。隣接したテラス上の格子点への遷移確率は、上段側のテラスでの遷移確率に従うこととする。

吸着原子の固化は吸着原子がステップの下段側に接したときのみ起きる。固化または融解によるステップエネルギーの増加を $\Delta E_s$ とし、化学ポテンシャルの利得を $\phi$ とすれば、固化の確率 $p_s^{12,13)}$ は

$$p_s = \left[ 1 + \exp \left( \frac{\Delta E_s - \phi}{k_B T} \right) \right]^{-1} \quad (1)$$

と表わせる。ここで、固体原子間の結合エネルギーを $\varepsilon$ とすれば、 $\Delta E_s = \varepsilon \times$ (ステップ長さの増加)となる。また、固体原子の融解はステップを構成している原子だけに生じて、その確率 $p_m$ は

$$p_m = \left[ 1 + \exp \left( \frac{\Delta E_s + \phi}{k_B T} \right) \right]^{-1} \quad (2)$$

である。

### §3 ステップ流モデルとの対応

§2で説明したような単純化した格子モデルでモンテカルロ・シミュレーションを行うのは、ステップ流モデルとの対応をつけるためである。§2のモデルと対応する吸着原子密度 $c$ の従う拡散方程式を考えると、

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D_x \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + D_y \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} - v_d \frac{\partial c}{\partial y} \quad (3)$$

となる。ここで、 $D_x$ および $D_y$ はそれぞれ $x$ 方向と $y$ 方向の拡散係数で、テラスAでは $(D_x, D_y) = (p, 1)$ 、テラスBでは $(D_x, D_y) = (1, p)$ である。 $v_d$ は吸着原子のドリフトの速度で $v_d = D_y F/k_B T$ と表わせる。

ステップとテラスとの原子のやり取りに注目

し、ステップに沿った拡散を無視するならば、ステップでの境界条件は、

$$K_{\pm} (c|_{\pm} - c_{eq}) = \pm \left( D_x \frac{\partial c}{\partial x} \Big|_{\pm} \hat{e}_x + D_y \frac{\partial c}{\partial y} \Big|_{\pm} \hat{e}_y \right) \cdot \hat{n} \mp v_d \hat{e}_y \cdot \mathbf{n} c|_{\pm} - P(c|_{\pm} - c|_{\mp}) \quad (4)$$

となる<sup>13)</sup>。ここで、 $c|_{+}$ および $c|_{-}$ は下段側テラスと上段側テラスでのステップ位置での吸着原子密度を表わし、 $\hat{n}$ はステップ下段方向を向いているステップの単位法線ベクトルである。

(4)式の左辺は、ステップで取り込まれる原子数はステップでの原子密度の平衡値 $c_{eq}$ からの差に比例するというを意味する。シミュレーションでは $c_{eq}$ は近似的に、

$$c_{eq} = \left[ 1 + \exp \left( \frac{\phi}{k_B T} \right) \right]^{-1} \quad (5)$$

となる。 $K_{\pm}$ はカイネティック係数であり、 $K_+$ と $K_-$ は一般的には異なってよい。 $K_+$ と $K_-$ が異なることはEhrlich-Schwoebel効果(ES効果)<sup>14,15)</sup>と呼ばれ、結晶が昇華中や成長中にステップの蛇行やバンチングを引き起こす原因となる。シミュレーションでは、拡散の異方性の下でのドリフト流の効果をみるためにES効果を抑え、カイネティック係数の値が $K_{\pm} \approx 4$ となるようにした。

(4)式の右辺の第1項は、吸着原子の密度勾配による拡散でステップに向かって流れ込んでくる吸着原子数を表わし、第2項はドリフトによる流れ込んでくる原子数を表わしている。第3項はステップに向かって流れ込んできた原子のうち、ステップで固化することなく隣接したテラスに流れていく原子の数を表わしており、シミュレーションで用いたモデルは $P \rightarrow \infty$ の極限に対応するモデルである。これまでの1次元ステップ流モデルによる解析<sup>8,9)</sup>が $P=0$ の場合を取り扱っているのと大きく異なっている。

### §4 結果

以下にモンテカルロ・シミュレーションの結果についてまとめる。すべてのシミュレーションは系の大きさが $128 \times 128$ の系で行う。系には32本のステップがあり、パラメータは $\varepsilon/k_B T = 1.0$ 、 $\phi/k_B T$

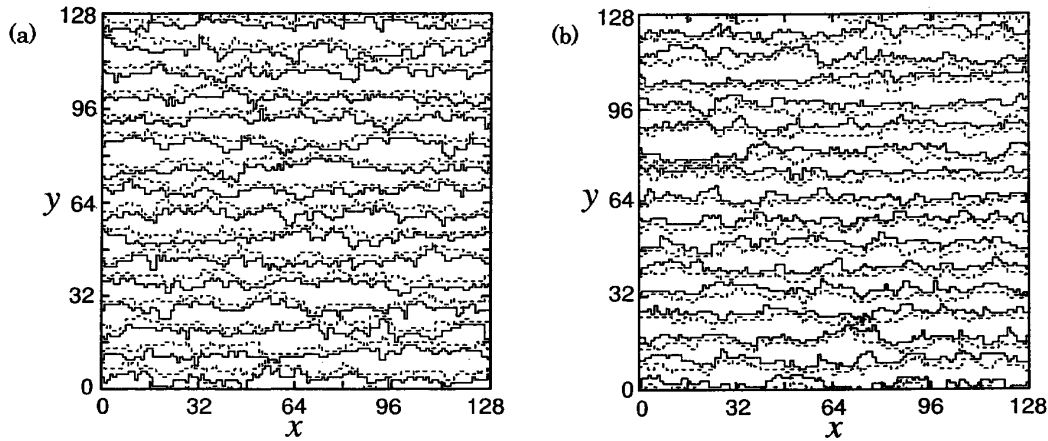


Fig. 1 Snapshots of step bunching in the initial stage (a) with step-down drift and (b) with step-up drift.

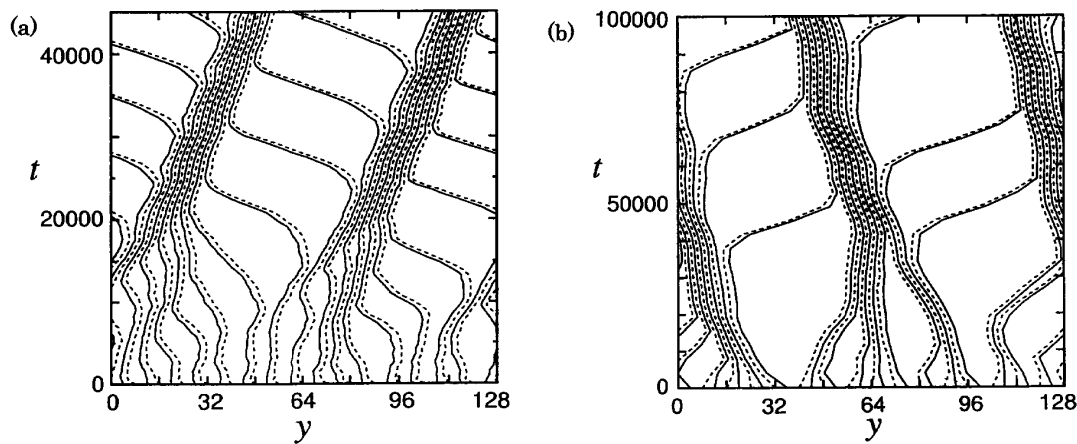


Fig. 2 Time evolution of step bunches (a) with step-down drift and (b) with step-up drift.

$= 1.0$ ,  $p = 0.5$  および  $Fa/k_B T = 0.3$  とする (+(-) はそれぞれ下段(上段)方向のドリフト流に相当する).

Fig. 1 はバンチングの初期段階を示したスナップショットである. 図の下( $y$ 座標が小さい方向)がテラスの上段方向である. 実線が A テラスの下側にある  $S_B$  ステップを表わし点線が上側にある  $S_A$  ステップを表わしている. ドリフトが下段向きにある場合 (Fig. 1(a)) にも上段向きにある場合 (Fig. 1(b)) にもステップの対形成が起きる. 対同士の衝突により所々に小さいステップの束ができていのがみられる. ドリフト流の向きとともにステップ対の間のテラスの種類が入れ替わり, 下段向きのドリフトでは  $y$  方向の拡散が速い A テラスが広がり, 上段向きのドリフトでは  $y$  方向の拡散が遅い B テラスが広がる. これらは安定性解析の結果<sup>8)</sup>と一致する<sup>11)</sup>.

Fig. 2 はステップの平均の位置の時間変化を表わしている. 横軸が平均のステップの位置を表わし縦軸が時間を表わしている. ドリフトの向きが下段向き (Fig. 2(a)) および上段向き (Fig. 2(b)) のいずれの場合にも, 初期段階にできたステップ対の衝突合体が起きて大きな束ができる. 十分に時間が経つとステップ対とステップの束との衝突が繰り返される. ステップの束の動く方向はドリフト流の向きとともに変化して, ドリフト流が下段向きの場合には前進し, ドリフト流が上段向きの場合には後退する. ステップの束の大きさが成長する速度はドリフトの向きにより異なり, ドリフトが上段向きの方が下段向きのときに比べて遅い.

Fig. 3 は十分に時間が経った後のステップの束の様子を示すスナップショットである. どちらの場合にもすべてのステップが集まって一つの直線

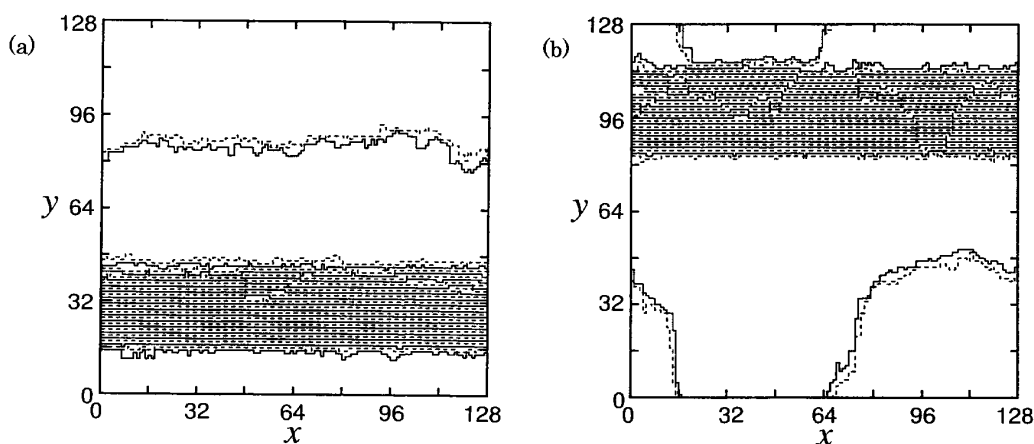


Fig. 3 Snapshots of step bunching in a late stage (a) with step-down drift and (b) with step-up drift.

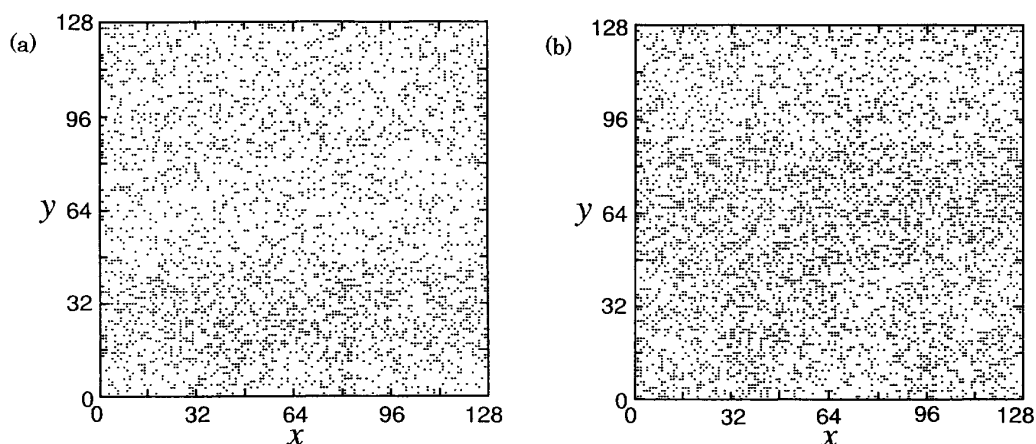


Fig. 4 Distribution of adatom density in Fig. 3 (a) with step-down drift and (b) with step-up drift.

的な束になることがわかる。ドリフトの向きの違いにより大きなテラス上のステップ対の揺らぎ幅に違いが生じ、ドリフトが上段向きときにはステップ対が蛇行をしているのに対して、下段向きのときには揺らぎが小さく直線的である。

吸着原子の密度分布を考えると、束の動く方向は定性的には説明できる。Fig. 4(a)はFig. 3(a)のときの吸着原子の密度分布を表わしている。この場合には、束の外側の広いテラスでは $y$ 方向の拡散係数が大きい。拡散係数が小さいテラスは束の内部にあるので、平均してみれば束の外側の方が内側に比べて吸着原子が速く動くこととなる。おおざっぱに言ってしまうと、交通渋滞のときの車と同じように、吸着原子がゆっくり動く束内では渋滞がおきて吸着原子密度が高くなり、速く動くテラス上では渋滞が緩和されて吸着原子の密度が低くなる。したがって、テラス上のステップの対は吸着原子の密度が低い場所にいることになるの

で後退することになる (Fig. 2(a)). 系全体としては保存系なので、対が後退するならばステップの束は前進することになる。ドリフト流が下段に流れているときには、ちょうど逆の理由でテラス上での吸着原子密度が高くなり (Fig. 4(b)), ステップ対は前進し束は後退することになる (Fig. 2(b)).

## §5 まとめ

シリコンの(001)面でのステップバンチングを念頭において、モンテカルロ・シミュレーションにより、交互に入れ替わる拡散の異方性があるときのステップのバンチングについて調べた。安定性解析から期待されるように、初期段階では上段向きのドリフトでも下段向きのドリフトでもステップ対が生じ、長時間後にはドリフトの向きによらず大きなステップの束が生じる。ドリフトの向

きが入れ替わるとステップ対同士の間テラスの種類も入れ替わる。ドリフトの向きが電流の向きと同じであることが実験<sup>16)</sup>から予測されているので、後期段階での大きな束の形成は、バンチングにより広がるテラスの種類も含めて実験<sup>2-4)</sup>と定性的に一致する。

ドリフトの向きによらずバンチングが起きたという結果は、1次元ステップ流モデルから得られた結果<sup>9,10)</sup>とは異なる。1次元ステップ流モデルでは、ここで用いたモデルで取り入れてないES効果<sup>14,15)</sup>が考慮されており、この効果がドリフトによる不安定化を妨げるように働いているのかもしれない。一次元ステップモデルでは $P=0$ の場合を考えているのに対して、ここでは $P \rightarrow \infty$ に対応するモデルを用いている。拡散の異方性を考慮しないモデルにおいては、 $P=0$ の場合と $P \rightarrow \infty$ の場合ではバンチングを起こすドリフトの向きが逆転することが知られている<sup>13,17)</sup>。したがって、ここで用いた拡散の異方性を考慮したモデルにおいても $P$ の値がバンチングを起こす条件に影響を与えているのかもしれない。また、ドリフトの向きにより束の成長する速度が変化するので、1次元ステップモデルのシミュレーションでも、より長時間のシミュレーションを行えばバンチングが生じる可能性も考えられる。

ここで用いたモデルは非常に単純化したモデルであったが、拡散の異方性の効果を考慮することでシリコン(001)微斜面でのバンチング同様のバンチングを起こすことができた。最近、シリコン(001)面ではステップの蛇行についても観察されている<sup>18)</sup>が、ここで用いたモデルでも、適切なパラメータを用いれば蛇行を引き起こすことができる。今後、実験との比較やこれまで調べられてき

たステップモデルとの違いの検討を定量的なことまで含めて詳しく行う必要であるが、シリコン(001)微斜面でのステップの不安定化には、表面再配列による拡散の異方性が中心的な働きをしていると考えられる。

**謝辞** 本研究は日本学術研究会・未来開拓推進事業「原子スケール表面界面ダイナミクス」プロジェクトのもとに行われたものであり、文部省科学研究費補助金の援助を受けている。

### 〔参考文献〕

- 1) A. V. Latyshev, A. L. Aseev, A. B. Krasilnikov and S. I. Steinn: Surf. Sci. **213** (1989) 157.
- 2) H. Kahara and K. Yagi: Jpn. J. Appl. Phys. **28** (1989) L1042.
- 3) L. V. Litvin, A. B. Krashnikov and A. V. Latyshev: Surf. Sci. Lett. **244** (1991) L121.
- 4) A. V. Latyshev, L. V. Litvin, A. L. Aseev: Appl. Surf. Sci. **130** (1998) 139.
- 5) M. Ichikawa, T. Doi: Appl. Phys. Lett., **60** (1992) 1082.
- 6) J. J. Métois, J. C. Heyraud and A. Pimpinelli: Surf. Sci. **420** (1999) 250.
- 7) S. Stoyanov: Jpn. J. Appl. Phys. **30** (1991) 1.
- 8) S. Stoyanov: Jpn. J. Appl. Phys. **29** (1990) L639.
- 9) A. Natori, H. Fujimura and H. Yasunaga: Jpn. J. Appl. Phys. **31** (1992) 1164.
- 10) A. Natori, H. Fujimura and M. Fukuda: Appl. Surf. Sci. **60/61** (1992) 85.
- 11) M. Sato, M. Uwaha, Y. Saito: J. Cryst. Growth (in press).
- 12) Y. Saito and M. Uwaha: Phys. Rev. B **49** (1994) 10677.
- 13) M. Sato, M. Uwaha and Y. Saito: Phys. Rev. B **62** (2000) 8452.
- 14) G. Ehrlich and F. G. Hudda: J. Chem. Phys. **44** (1966) 1039.
- 15) R. L. Schwoebel and E. J. Shipsey: J. Appl. Phys. **37** (1966) 3682.
- 16) M. Degawa, H. Minoda, Y. Tanishiro and K. Yagi: Surf. Sci. **461** (2000) L528.
- 17) S. Stoyanov: Surf. Sci. **416** (1998) 200.
- 18) J.-F. Nielsen, M. S. Pettersen and J. P. Pelz: Surf. Sci. **480** (2001) 84.