

機関番号：13301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008～2010

課題番号：20540367

研究課題名（和文） 流れがある拡散場中での成長界面の形態不安定性

研究課題名（英文） Morphological instability of growing interface in diffusion field with a flow

研究代表者

佐藤 正英（SATO MASAHIDE）

金沢大学・総合メディア基盤センター・教授

研究者番号：20306533

研究成果の概要（和文）：本研究では、拡散場に流れが加わった場合での結晶表面のステップの不安定化について調べた。微斜面上では、ステップが直線的でなくなる蛇行という不安定化と等間隔に並んだステップが束状になるバンチングという不安定化が起きる。本研究では、結晶が溶液から成長する場合の微斜面を想定して、溶液中に流れが加わった場合にこれらの不安定化がどのような条件で生じるかを調べ、バンチングにおいて個々のステップが束と衝突と離脱を繰り返しながら束が成長することを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：We studied morphological instability of growing vicinal face in the diffusion field with a flow. On a vicinal face, steps show two types of instabilities, step wandering and step bunching. In our study, we considered a growing vicinal face in a solution and studied the condition to cause the step instabilities and the motion of each step. We showed that during step bunching, separation and collision repeatedly occurs.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2009 年度	900,000	270,000	1,170,000
2010 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	2,600,000	780,000	3,380,000

研究分野：物性理論

科研費の分科・細目：物理学 ・ 数理物理 ・ 物性基礎

キーワード：ステップ，微斜面，結晶成長，非平衡

## 1. 研究開始当初の背景

超高真空中のシリコン結晶に直流電流を流して加熱し結晶を昇華させるとステップが蛇行することやバンチングすることが知られている。この不安定化の原因は、直流電流を流すことにより、吸着原子の流れが生じて、表面拡散に異方性が生じるためであると考えられている。

これまでに、平成 13 年度には未来開拓推進事業から補助金を受け、平成 14・15 年度、および平成 17-19 年度にそれぞれ科学研究費若

手(B)を受けて、シリコン(111)微斜面でのステップの挙動およびシリコン(001)微斜面でのステップの挙動について以下のような手段を用いて調べた。

1. 等間隔直線ステップ列に微小な揺らぎを与え、ステップ列の線形安定性を調べる。
2. 遞減摂動法を用いて揺らぎの振幅の増加による非線形効果を取り入れ、非線形発展方程式を導出し、不安定化の臨界点近傍でのステップの挙動を調べる。

3. 格子モデルによるモンテカルロ・シミュレーションを用いて、臨界点より十分離れたパラメータ領域でのステップの挙動を調べる。

これにより、ステップがバンチングや蛇行する条件を明らかにするとともに、つぎのようなことが明らかになった。

1. 結晶表面からの蒸発がある場合には、蛇行するステップは蔵本-シバシンスキー方程式に従い、カオス的な振る舞いを生じる。蒸発がない場合には、Pierre-Louisらが導出した式に従い、結晶表面上に深い溝ができる。
2. 結晶表面からの蒸発がある場合には、バンチングにより等間隔なステップ束が形成され、ステップ密度はベニー方程式に従う。蒸発がない場合には、ステップ束は時間のベキで成長し続ける。

また、シリコン(001)微斜面と(111)微斜面の不安定化条件の違いなども明らかにできた。こからは海外の多くの理論的研究とも競合関係にあったが線形安定性解析、非線形解析、格子モデルによるモンテカルロ・シミュレーションという異なった3つの手法を同時に駆使し、巨視的スケールと微視的スケール両方から研究した点は特徴的である。

## 2. 研究の目的

本課題では、これまでの成果を踏まえて、体積拡散場に流れが加わった場合のステップの挙動について調べることにした。念頭に置いたのは、溶液からの結晶成長時の結晶表面の不安定化に対応したモデルである。

溶液からの成長の場合には、(1)溶液中を拡散する原子が直接ステップに取り込まれる過程、(2)一度表面に吸着した原子が表面拡散したのちにステップに取り込まれる過程、の2つの過程に分けて考えられる。これまでは、(1)の過程を取り入れてステップ列のバンチングに対する線形安定性解析がなされているだけであった。本課題では、(1)および(2)の効果の両方を取り入れたモデルによりステップの挙動を調べる。

これまでの研究では、ステップを直線的と仮定して等間隔ステップ列のステップ間隔の揺らぎに対する線形不安定性について調べてあるだけであったので、本課題では以下のことを調べることにした。

1. 2次元拡散場中での1次元界面を考え、モンテカルロ・シミュレーションを用いて、不安定になった等間隔ステップ列のバンチングの様子を調べる。
2. 3次元拡散場中での2次元界面を考え、線形安定性解析により、ステップ列の蛇行の可能性について調べる。
3. 3次元拡散場中での2次元界面を考え、

モンテカルロ・シミュレーションを用いて、ステップ列の2次元な振る舞いについて調べる。

従来の研究では、ステップを直線と仮定した1次元界面モデルでバンチングの線形安定性解析がなされているのみであった。

本研究では2次元界面モデルを用いることにより、バンチングと同時にステップの蛇行の可能性を調べることができ、モンテカルロ・シミュレーションを行うことにより、ステップの形態不安定化によりどのような結晶表面構造が現れるかが明らかにできる。

## 3. 研究の方法

本研究では、これまで研究代表者が行ってきた表面拡散場中でのステップの挙動を調べるモンテカルロシミュレーションの手法を、3次元拡散場に応用することで、モンテカルロシミュレーションを行った。

簡単のために、溶液中に格子点を考え、溶質は格子点上を移動する粒子として扱った。また、溶液中の流れの効果は、格子点上を移動する粒子の繊維確率の非等方性として表すこととした。微斜面では、結晶表面に原子・分子レベルの段差ができていいる。しかし、この段差が流れに対して及ぼす効果は小さいとして、結晶表面上の段差は無視することとした(図1)。

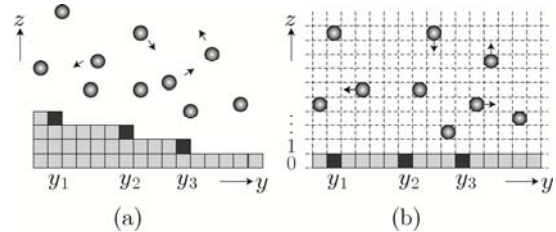


図1: 微斜面の取り扱いの模式図

溶液内に考えた格子点上を移動する粒子は、移動の試行を重ねるごとに、粒子密度が少ない方向に向かって移動することになる。もし移動後にステップ位置に到達すると、ここで固化を試みる。もし、固化に成功すると、溶液中の粒子は消滅し、ステップ位置は前進することになる。

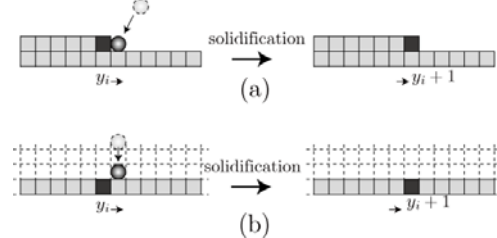


図2: 固化時のステップと粒子の挙動

また、シミュレーションでは、ステップを構成している粒子の融解も起きる。ステップ粒子が融解すると、ステップは後退するとともに溶液中に粒子が生成される。

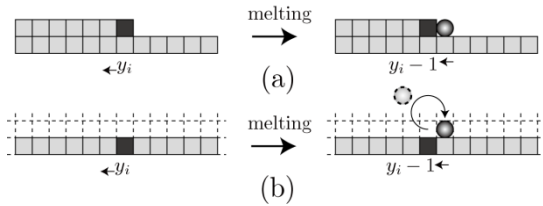


図 3: 融解時のステップと粒子の挙動

シミュレーションでは、界面から一定距離の高さで、粒子の密度が一定値に保ちながら、ステップの挙動を調べた。

#### 4. 研究成果

まずは、ステップが直線的であると仮定してステップの束形成について調べた。図 4 にステップの時間変化を示す。縦軸は時間であり、横軸がステップ位置を表している。

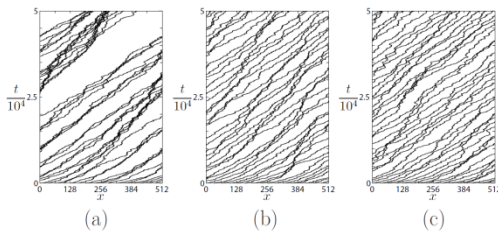


図 4: ステップ位置の時間変化

それぞれ、ステップの下段方向、つまり前進する方向を  $x$  方向としている。図 4(a) は流れが下段方向にある時のステップ位置の時間変化、(b) は流れがない時、(c) は流れが上段方向にある時の時間変化を表している。この結果から、ステップの前進方向と同じ方向に吸着原子の流れがある時に不安定化が起きることが分かる。下段方向に流れがある時にさらに長時間の挙動を調べた結果が図 5 である。

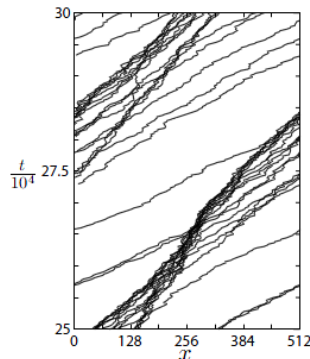


図 5: 長時間後のステップの挙動

束の大きさには上限があり、あまり大きくなると、壊れることもわかった。つまり、ステップ束の大きさは、不安定化の初期状態では増加するが、一定値に収束することが期待される。

図 6 はステップ間隔の揺らぎ幅の時間変化を調べた結果である。図 4 から期待されるように、下段方向に流れがある時に束形成をすることで、ステップ間隔の揺らぎが大きくなることと、揺らぎ幅が長時間後には一定値に収束していることが分かる。

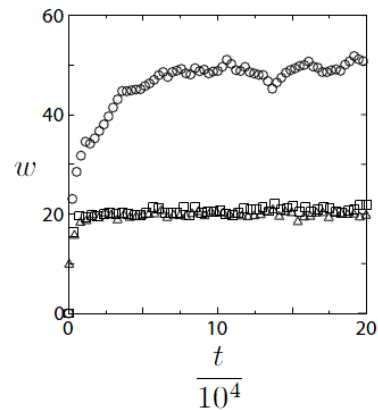


図 6: ステップ間隔の揺らぎ幅

以上より、ステップバンチングの時には、ステップの束への衝突、離脱を繰り返しながら、ステップ束が徐々に大きくなり、一定値に収束することが分かった。

なお、本課題では 2 次元的な振る舞いについても調べている。現在、投稿中であり、その内容の詳細については報告を省くが、図 7 のような微斜面のパターンが得られた。図 7 では、見やすいように、交互にテラスの色を変えている。

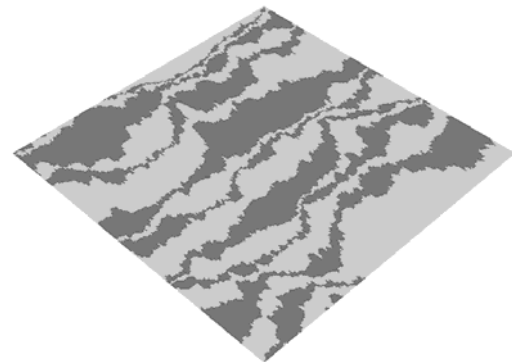


図 7: 2次元微斜面のパターン

これからも分かるように、ステップはステップに沿った方向に大きく揺れている。その効果がどのように、ステップ束の成長則に影響を及ぼすかを明らかにすることが今後の課題である。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 6 件)

- ① Masahide Sato, J. Phys. Soc. Jpn., “Growth Law of Bunch Size in Step Bunching Induced by Flow in Solution” Vol. 80, No. 2, (2011) p. 024604(4pages) (査読あり)
- ② Masahide Sato, Shinji Kondo, and Makio Uwaha, J. Crst. Growth, “Formation of finger-like step patterns on a Si(111) Vicinal Face” 318 (2011) 14-17 (査読あり)
- ③ Masahide Sato, J. Crst. Growth, “Step Bunching Induced by Flow in Solution”, 381 (2011) 5-9(査読あり)
- ④ Masahide Sato, J. Phys. Soc. Jpn., “Step Instabilities on a Vicinal Face induced by Flow of Solution”, 79 (2010) 064606 (5pages) (査読あり)
- ⑤ Kenta Ikawa and Masahide Sato, J. Phys. Soc. Jpn., “Step Instabilities on Si(111) Vicinal Face near  $1 \times 1 \leftrightarrow 7 \times 7$  Transition Temperature during Sublimation”, 78 (2009) 124602 (6 pages) (査読あり)
- ⑥ Kenta Ikawa and Masahide Sato, Phys. Rev. E, “Step wandering on Si(111) vicinal face near the  $1 \times 1 \leftrightarrow 7 \times 7$  transition temperature with drift of adatoms parallel to steps”, 18 June 2008 (4 pages) 062601 (査読あり)

[学会発表] (計 11 件)

- ① 佐藤正英, Si(111)微斜面でのステップのくし状蛇行パターンについて, 学習院大学計算機センター研究会 「結晶成長の数理」(2010年12月25日, 学習院大学(東京都))
- ② Dai Guoliang, 佐崎元, 佐藤正英, 横山悦郎, 古川義純, ステップ前進速度のステップ間隔依存性: リゾチーム単斜晶系結晶上でのその場測定, 日本物理学会 2010年秋季大会, 2010年9月24日, 大阪府立大学(大阪府)
- ③ 稲葉雅至, 佐藤正英, 溶液から成長する

微斜面の不安定化と流れの効果 I, 日本物理学会 2010年秋季大会, 2010年9月24日, 大阪府立大学(大阪府)

- ④ 近藤信二, 佐藤正英, 上羽牧夫, Ga吸着中のSi(111)面でのステップパターン生成のモデル II, 日本物理学会 2010年秋季大会, 2010年9月24日, 大阪府立大学(大阪府)
- ⑤ Masahide Sato, Shinji Kondo, and Makio Uwaha, Formation of Finger-like Step Patterns on a Si(111) Vicinal Face, The 16th International Conference on Crystal Growth, 2010. 8. 11, Beijing International Convention Center (China)
- ⑥ Masahide Sato, “Step Bunching Induced by Flow in Solution, The 16th International Conference on Crystal Growth, 2010. 8. 9, Beijing International Convention Center (China)
- ⑦ 近藤信二, 佐藤正英, 上羽牧夫, Ga吸着中のSi(111)面でのステップパターン生成のモデル I, 物理学会第65回年次大会, 2010年3月21日, 岡山大学, (岡山県)
- ⑧ 佐藤正英, 流れのある溶液に接するステップ列の挙動, 物理学会第65回年次大会, 2010年3月21日, 岡山大学, (岡山県)
- ⑨ 佐藤正英, 流れがある拡散場と接するステップ列の挙動, 第39回結晶成長国内会議, 2009年11月14日, 名古屋大学(愛知県)

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐藤 正英 (SATO MASAHIDE)

金沢大学・総合メディア基盤センター・教授  
研究者番号: 20306533