Step Bunching Induced by Impurities: Effects of motions of impurities on Step Bunching

メタデータ	言語: jpn
	出版者:
	公開日: 2020-05-18
	キーワード (Ja):
	キーワード (En):
	作成者:
	メールアドレス:
	所属:
URL	https://doi.org/10.24517/00058226
	This work is licensed under a Creative Common

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-ShareAlike 3.0 International License.



総合報告

不純物によるステップ束の形成 - 不純物の挙動がステップ束の形成へ及ぼす影響-

佐藤正英 ^{1*}

Step Bunching Induced by Impurities –Effects of motions of impurities on Step Bunching–

Masahide Sato^{1*}

We consider a vicinal face, where atoms and impurities impinge and evaporate to a vapor phase, to study how the surface diffusion and evaporation of impurities affect step bunching induced by impurities. When the lifetime of impurities on the vicinal face $\tau_{\rm imp}$ is long and the surface diffusion of impurities is neglected, the step bunches induced by impurities are tight. When $\tau_{\rm imp}$ decreases, the size of the step bunches, which means the number of steps in the bunches, decreases but the separation of single steps from bunches does not occur. When we take into account fast surface diffusion of impurities, the separation and collision between single steps and step bunches occur repeatedly.

はじめに

1.1 不純物によるステップ束形成(バンチング)の素朴な筋書き

結晶表面上に吸着した異種原子(以下,不純物と呼ぶ)が微斜面を不安定化し,ステップの束形成(ステップ・バンチン グ)を引き起こすことは良く知られており,いくつかの教科書^{1,2)}でも束形成の機構が説明されている.その模型³⁾は非 常に単純である.環境相から結晶表面に向かって不純物が入射する.不純物の性質としては結晶表面に吸着するとステッ プの前進を妨げると仮定する.ステップが前進して不純物とぶつかった場合には,不純物を取り囲み結晶内に取り込まな いとステップは前進できない.一定の過飽和度が与えられている場合には過飽和度によって2次元島の臨界核の直径が決 まるが,ステップの揺らぎの波長がこの直径程度以下になると,ステップ自由エネルギーを最小にしようとする効果(ギ ブス・トムソン効果)で揺らぎの振幅の増幅が抑えられる.そのために,結晶表面上での不純物密度が高くなって不純物 間の距離が臨界核の直径程度以下になるとステップが前進できなくなる,不純物によるステップのピン止めが起きる.も ちろん熱揺らぎで不純物を乗り越えてしまうこともあるだろうが,ステップの前進速度は極端に遅くなる.そこまで不純 物の密度が高くならなくても,不純物が吸着することでステップの前進速度は遅くなるはずである.もし,微斜面上のあ るステップが他のステップよりも遅れたとしよう.ステップの前方のテラスは広がることになる.そのために前方のテラ スが不純物にさらされている時間が長くなり,テラス上での不純物の密度が高くなる.そのために、そのステップはます ます前進速度が遅くなる.そのために,後方から来たステップに追いつかれてステップ対が形成され,それが引金となっ てさらに大きいステップの束が形成されるという筋書きである.

1.2 いくつかのこれまでの理論的な研究と本研究の狙い

この筋書きは直観的でわかりやすい.そのためこの考え方に従って数多くの理論研究がなされている.また,この考え 方を用いて解釈されている実験も膨大な数がある.ここでは,できるだけ単純化した模型を用いて現象を理解しようと しているいくつかの理論的研究について簡単に紹介する.

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

¹ Information Media Center, Kanazawa University, Kakuma-machi, Kanazawa 920-1192, Japan

 $^{* \ \} Corresponding \ author \ E-mail: \ msato002@staff.kanazawa-u.ac.jp$

第1.1節で述べた筋書きでは、微斜面が不安定化して束を形成しようとすることは分かる.しかし、最終的にどのよう な束が現れるのかについては説明できていない. Kandel 等⁴⁾は、一次元モデルでステップ束形成の時間発展を調べた. 結晶表面上の不純物の密度は、ステップが通過して不純物を結晶内に取り込み清浄化するまでの時間に依存するはずで ある.表面がどれだけ環境相にさらされているかはテラス幅にもよることから、ステップの速度をテラス幅の関数として 表せる.関数がどのような条件を満たすべきかは言えても、どのような関数になるかはそれほど自明ではない. Kandel らはステップ速度をあるテラス幅の関数として仮定し一次元モデルでステップの挙動を調べ、初期のステップ間隔によ り、等間隔なステップの束ができたり、東がカオス的な挙動をすることを示した.また、v.d. Eerden 等⁵⁾は少し異なる 一次元モデルを用いてステップ東形成を調べた.ステップ東状に凝集することは、平均的なテラス幅が広がることと等し いが、その増加が対数的になることを示した.ステップ東の二次元的な挙動について Weeks 等のグループ^{6,7,8)}がモン テカルロ・シミュレーションを行い、設定の違いにより直線的な束や網目状の束のパターンが見られることを示してい る. Krug 等^{9,10)}も吸着原子の表面拡散が不純物に阻害される効果を拡散係数に取り入れたモデルでステップ東の形成 を調べている.しかし、拡散係数の不純物密度への依存性の取り入れ方は経験的であり、取り入れ方に疑問が残る.ま た、Lutsuko 等^{11,12)}もモンテカルロ・シミュレーションを行い、ステップ・バンチングが起きてステップがマクロステッ プとなることで、単独なステップでは乗り越えられない不純物を束形成することで乗り越えられることを示している.

理論やシミュレーションによる研究のいくつかを紹介した.これらで使われたモデルは明解なモデルであり,得られた結 果もとても興味深い.しかし,単純化のために,吸着原子や不純物の拡散場の影響を経験的にモデルに取り入れている. 拡散場の影響をより微視的裏付けがあるモデルから考えるためには,ステップ位置における適切な境界条件を考えて吸着原 子と不純物の拡散方程式を連立させて解き,Burton-Cabrera-Frank (BCF)のステップ流モデル¹³⁾を用いてステップの 挙動を考えれば良いだろう.しかし,それでも微斜面の安定性解析を超える解析は数学的に煩雑になるかもしれない.そ こで本稿では,それとは異なる手法として,原子や不純物の拡散を考慮に入れたモデルを用いてモンテカルロ・シミュ レーションを行い,不純物の拡散や蒸発でステップ束形成がどのような影響を受けるかを調べる.なお,溶液成長を考え れば環境相(溶液)中での拡散を考えるべきだろうが,簡単のために気相成長を想定して表面拡散場を考えることにする.

2. モデル

ここで用いるモデルは、もともとは Saito や Uwaha 等 によって作られたモデル¹⁴⁾に不純物の効果を取り入れ たモデル^{15,16,17)}である.**Fig.l**のような微斜面を考え る. 微斜面には一定の頻度 Fと Fimp で原子と不純物が 入射する.入射して吸着原子となった原子(A)と不純物 (B)は、それぞれ滞在時間 ~ と Timp の間、結晶表面上を 拡散係数 D_s と D_{imp} で表面拡散する.滞在時間中にステッ プを構成している固体原子(C)に接した吸着原子(D)は 固化を試みるが,滞在時間中に固化できずに吸着原子 である場合は気相へ戻る. 不純物は固化しないが, テラ ス上に空いた穴へ直接入射や表面拡散で入った場合や, ステップの前進によって周囲を全て固体原子か不純物で 取り囲まれてしまった場合(E)には不純物は固体内に取 り込まれたものとみなす.これらの不純物は再び周囲の 一部が固体原子や不純物でなくなるまで,表面拡散も気相 への蒸発もしないものとする. 固体内に取り込まれた不純 物上のステップの移動は原子上の移動と差がないとみなす.



Fig. 1 Vicinal face in our model.

シミュレーションでは正方格子を考え、ステップを構成している固体原子(以下、ステップ原子と呼ぶ)、固体に取り込まれていない不純物、吸着原子の状態を遷移させる。状態を変化させる粒子を1つ選び、これが吸着原子か不純物であれば、蒸発の試行か拡散の試行を行う.拡散は4つの隣接格子点への移動で表し、すでに移動候補が吸着原子か不純物で占有されていれば移動させない.ステップを超えた表面拡散を許し¹⁸⁾、Ehrlich-Schowebel 効果^{19,20)}は考えない. $D_{\rm s}$ と $D_{\rm imp}$ の差を付けるため、不純物では拡散の試行を確率的に起こりにくくする.吸着原子が選択され、移動の試行を行った後には固化の試行を行う.もし、ステップ原子を選んだならば融解の試行を行い、融解したステップ原子は吸着原子となる.この固化・融解の過程で不純物の結晶への取り込みや結晶相からの解放が起きる.不純物の場合は、移動先の格子点が全てステップ原子か不純物で囲まれていた場合には、固体に取り込まれたとみなす.上記の過程を何度か繰り返した後に、適当な間隔で不純物の入射を行う.固化の確率 p_+ と融解の確率 p_- ¹⁴⁾ は、以下のように与えられる.

$$p_{\pm} = \left[1 + \exp\left(\frac{\Delta E \mp \Delta \mu}{k_{\rm B}T}\right)\right]^{-1},\tag{1}$$

ここで、 ΔE は固化によるステップエネルギー(単位長さ辺りのステップエネルギー $\epsilon \times \lambda$ ステップ長)の変化、 $\Delta \mu > 0$ は固化による化学ポテンシャルの利得、 $k_{\rm B}$ はボルツマン定数、Tは温度を表している.このモデルでは、ステップの揺らぎがそれほど大きくない条件ならば、ステップ・スティフネス $\tilde{\beta}$ は格子間隔をaとして、

$$\tilde{\beta} = \frac{2k_{\rm B}T}{a}\sinh^2\frac{\epsilon}{2k_{\rm B}T},\tag{2}$$

と見積もれる^{14,21)}. ステップのキンク位置での原子の固化融解の頻度がちょうど釣り合う平衡原子密度 c_{eq}^{0} は $(1 - c_{eq}^{0})p_{+} = c_{eq}^{0}p_{-}$ の条件から以下のように見積もれる¹⁴⁾.

$$c_{\rm eq}^0 = \left[1 + \exp\left(\frac{\Delta\mu}{k_{\rm B}T}\right)\right]^{-1} \tag{3}$$

ー般的な動的モンテカルロ・シミュレーションでは、全ての起こり得る事象をリスト化し、それぞれの頻度に応じてそれぞれの事象を起こす。これに対して、ここで用いたアルゴリズムでは、蒸発、表面拡散、固化、融解などをそれぞれ確率的に行うので、試行したが結局何も起きなかったという無駄な試行も存在し、効率的とは言えない。しかし、固化、融解、および入射に伴うステップ原子や固体に取り込まれた不純物、固体から解放された不純物の更新をするのが少々煩雑であるが、結晶表面での原子や不純物の拡散方程式を解く BCF タイプのステップ流モデル¹³⁾の視点から見れば理解しやすいという利点がある。

3. シミュレーションの結果

ここで用いるモデルは、不純物と原子の大きさの違いなど少し複雑な要素は無視した簡単なモデルである.そのため、 具体的な現実の系で起きていることをそのまま説明することは難しい.しかし、ステップの束形成で一般的に見られる現 象を大まかに理解する上では、物質固有のパラメータなどを含まないだけに逆に良いかもしれない.以下では、不純物に よるステップの束形成の特徴を理解するために、いくつかの極端なパラメータの組み合わせでステップの束形成のふるま いを見てみよう.その際、原子の入射頻度 F を変化させるときには、常に $F_{\rm imp}/F$ を一定値に保つ.具体的には、不純物 の入射頻度 $F_{\rm imp}$ が F に対して十分に小さい状況を考えるため、 $F_{\rm imp}/F = 4 \times 10^{-3}$ とする.

3.1 吸着原子と不純物の蒸発がなく不純物の表面拡散がない場合

まずは,非常に極端な場合として,結晶表面に入射した原 子と不純物の蒸発がなく不純物の表面拡散がない場合¹⁵⁾,つ まり $\tau \to \infty$, $\tau_{imp} \to \infty$, かつ $D_{imp} = 0$ の場合を考える.こ の系は、第1.1節で述べた状況と少し異なっている特殊な条件 である.第1.1節で紹介した筋書きでは、ステップが一定の過 飽和度の表面拡散場の中を前進しており,その条件下で不純物 の影響を考えていた.しかし、結晶表面に入射した原子の蒸発 がない場合には、もし不純物でステップがピン止めされたとし よう. 固化が起きないのでテラス上の吸着原子数はどんどん増 加する.結晶表面上の過飽和度が上昇することで臨界二次元核 が小さくなり、ステップは不純物のピン止めを外して前進し始 めることができる.そのため,面の成長速度Rは原子の入射 頻度 F と吸着原子の占める面積 Ω と高さ h を用いて $R = h\Omega F$ と表せ,不純物の入射頻度 F_{imp} は影響しない. Fig. 2¹⁵⁾ は系 の大きさ $L_x \times L_y = 256 \times 256$ で,ステップ数 N_s が8本の系で 行ったシミュレーションで得られたシミュレーション結果であ る. 各 F での R の値は, 10 個かそれ以上のサンプルで平均し て得られている、シミュレーションでは $\Omega = 1$ かつh = 1であ るため、予想されるようにF = Rの結果が得られた.





もちろん, ランダムに不純物が入射するので局所的には不純物間隔の粗密が生じる.そのため,不純物によるピン止めを外しにくくなる部分が出てステップの束形成も起きうる.**Fig. 3**¹⁵⁾ は系の大きさ $L_x \times L_y = 256 \times 256$ で,不純物と入射頻度の比を $F_{\rm imp}/F = 4 \times 10^{-3}$ に保って, F の値を変化させたときのステップ束の様子である.Fig.3(a) では,ステップが接する部分があるような束形成は起きていない.しかし,幅が広いテラスと狭いテラスが現れているという意味では,束が緩く束縛された「緩いステップ束」ができていると言えるかもしれない.Figs.3(b)-(c) では,ステップが接する部分が多数存在する「きつく束縛された束」とみなせる.これらの束は等間隔で同じステップ数からできており,束の大きさ(束の中のステップ数) は入射頻度 F が減少するとともに増加している.Fig.3のテラス上で見られる点は不純物

を表している.バンチングが起きてテラス幅が大きくなると、テラス上の不純物密度が高くなることもわかる.吸着原子 と不純物の蒸発がなく不純物の表面拡散がない場合は非常に単純な系なので、この関係は簡単に示せる.



Fig. 3 Snapshots of step bunches in late stages where $F = (a) 8 \times 10^{-5}$, (b) 2×10^{-5} , and (c) 5×10^{-6} . ¹⁵⁾

Fig. 3(b)や(c)のように、東内のステップ間隔が十分に密になっている同じ 大きさの東が等間隔にできたとしよう.もし、それぞれの東がステップが*N* 本のステップからなっているとすると、微斜面では高さhのステップがテラ ス間隔*l*で並んでいたものが、高さ*Nh*のマクロステップがテラス間隔*Nl* で並んだ表面になったとみなせる.微斜面の成長速度は*R* = ΩhF なので、 単独ステップの前進速度*V*sは*V*s = *Rl/h* = ΩFl となる.そのため、ステップ が通過する時間間隔 Δt_s は、 $\Delta t_s = l/V_s = 1/\Omega F$ となり、ステップの直前の不 純物密度 $\rho_{imp}^{(s)}$ は $\rho_{imp}^{(s)} = F_{imp}\Delta t_s = F_{imp}/(\Omega F)$ となる.一方、吸着原子と不純 物の蒸発がないなら束を形成しても面の成長速度自体はかわらずに*R*である. ステップ束の速度*V*b は*V*b = *RNl/Nh* = $\Omega Fl = V_s$ となり、単独ステップと速度 が変わらない.ステップ束直前の不純物密度 $\rho_{imp}^{(b)}$ は $\rho_{imp}^{(b)} = NF_{imp}/(\Omega F)$ と単独 ステップの場合の*N*倍になると予想される.シミュレーションでも、予想と 矛盾しない結果¹⁵⁾が得られている.

シミュレーションでは、吸着原子の入射頻度 F が高いときにはステップ束が 形成されず、F が低くなるとステップ束が形成され始めた. どの程度の入射頻度 で束形成が起き始めるのかを大雑把でも良いので見積もってみたい. ステップの 束形成の初期段階を見てみると、ステップの一部が不純物のピン止めの効果で前 進しにくくなり、ステップの揺らぎが大きくなることで局所的にステップ対が形 成されること¹⁵⁾から始まる.そこで**Fig.4**のように、不純物による効果で直線 的なステップの間で揺らぎ始めた微斜面上のステップを考えよう. 揺らぎが十分 に長波長で振幅も小さいならば、揺らいでいるステップへの原子の単位長さ当た



Fig. 4 Step fluctuating between two straight steps. ¹⁵⁾

りの流入は*Fl*と考えてよい.一方で,ステップが揺らぐことでギブストムソン効果により,揺らいだステップの平衡濃度は Δc だけ上昇する.これにより揺らいだステップから左右のステップへの原子の流出量は $2D_s\Delta c/l$ になる.ちょうど両者が釣り合うと直線的なステップで挟まれたステップは前進できなくなり,後方から前進してきたステップと衝突してステップ対を形成する.このときの入射頻度を*F*cとし不純物間の距離を*l*impとすると,

$$F_{\rm c}l = 2D_{\rm s}\frac{\Delta c}{l} = 4D_{\rm s}\Omega\frac{c_{\rm eq}^0\bar{\beta}}{k_{\rm B}T}\frac{1}{l}\frac{1}{l_{\rm imp}},\tag{4}$$

となる.おおよそ $l_{\mathrm{imp}}^{-1} = \sqrt{
ho_{\mathrm{imp}}^{(s)}}$ と考えて良いので,

$$F_{\rm c} = 4D_{\rm s}\Omega \frac{c_{\rm eq}^0 \tilde{\beta}}{k_{\rm B}T} \frac{\sqrt{\rho_{\rm imp}^{(s)}}}{l^2} = 4D_{\rm s}\Omega \frac{c_{\rm eq}^0 \tilde{\beta}}{k_{\rm B}T} \frac{1}{l^2} \sqrt{\frac{1}{\Omega} \frac{F_{\rm imp}}{F}},\tag{5}$$

と見積もれる. (5) 式では律速過程が表面拡散であることを仮定して $F_c \propto l^{-2}$ の結果を得ている. ステップカイネティクスが律速になる場合には, (4) 式において, 定数 K を用いて $D_s/l \rightarrow K$ と置き直せば良く

$$F_{\rm c} = 4K\Omega \frac{c_{\rm eq}^0 \tilde{\beta}}{k_{\rm B}T} \frac{\sqrt{\rho_{\rm imp}^{(s)}}}{l} = 4K\Omega \frac{c_{\rm eq}^0 \tilde{\beta}}{k_{\rm B}T} \frac{1}{l} \sqrt{\frac{1}{\Omega} \frac{F_{\rm imp}}{F}},\tag{6}$$

と見積もれる.ステップカイネティクスが律速になっている場合には、微斜面のステップ間隔lへの依存性が $F_c \propto l^{-1}$ となる. F_c の見積もりは非常に粗い近似なので係数まで一致はしないが、シミュレーションでも F_c のl依存性は拡散律速とステップカイネティクス律速の両方¹⁵⁾で確認できた.

3.2 吸着原子と不純物の蒸発,不純物の表面拡散もある場合

第3.1節の設定は非常に簡単であった.吸着原子と不純物の蒸発があり、さらに不純物の表面拡散も加わると、東形成の様子がどのように変わるのか¹⁶⁾見てみよう.

3.2.1 吸着原子と不純物の蒸発はあるが不純物の表面拡散がない場合

Fig. 5¹⁶⁾は,吸着原子と不純物の蒸発はあるが不純物の 表面拡散がないときの微斜面の成長速度RのF依存性を示 している.ここでも F_{imp}/F が一定になるようにFととも に F_{imp} も変えており,不純物の寿命 τ_{imp} は吸着原子の寿命 τ に比べて十分に長い.図の●は微斜面でのシミュレーショ ン結果,■はステップ密度が微斜面の場合と同一になるよ うに系の大きさを変えて,単独ステップの系で行ったシミュ レーション結果,赤い破線は吸着原子と不純物の蒸発がな い系でのRとFの関係,青い一点破線は不純物が存在しな い系で吸着原子の蒸発がある場合のRとFの関係を表して いる.吸着原子の蒸発があるとで,RはR = Fの関係か らずれる.吸着原子の蒸発を原子の入射が上回る必要性が あるために,R > 0となるFの臨界値 F^* が現れる.

また,有限のステップカイネティクスの効果やステップ間隔 と表面拡散距離の関係により,傾きも変化する.これが破線と 一点破線の関係である.ここに不純物の効果が加わるとどうな るかは■が表している.入射頻度が大きいときにはほとんど影 響がないが,入射頻度が小さいと不純物の効果でステップ速度





が減速することが分かる.ただし,熱揺らぎの効果で不純物をステップが取り囲んでしまうことは可能なので,非常に遅くても F* 以上では有限の速度である.さらに,ステップが複数本あることで束形成を起こす効果が加わったのが●である. Rが一点破線であらわされる速度よりも遅くなる F の範囲が広くなる.

Fig. 6¹⁷⁾は吸着原子と不純物の蒸発はあるが,不純物の表面拡散がない系でのステップ束の形成である. *T*_{imp}の値が大きくなるにつれて束のサイズが大きくなるが,いずれの場合にもステップは束内にきつく束縛されていることがわかる.



Fig. 6 Snapshots of step bunches in a late stage with $\tau_{imp} =$ (a) 3×10^4 , (b) 4×10^4 , (c) 5×10^4 , (d) 6×10^4 , (e) 7×10^4 , and (f) 8×10^4 .¹⁷

Fig. 6¹⁷⁾ に示したステップ束はいずれも直線的であった.そこでステップに沿った方向(*x*方向)に平均化したステップ の位置の時間変化を調べて,ステップ束が形成される過程を見てみよう.**Fig.7(a)-(f)**¹⁷⁾ は,それぞれFig.6(a)-(f)の平 均のステップ位置の時間変化を表している.図ではわかりやすくするために,ステップ位置の軌道の色を交互に変えてい る.Fig.7(a)ではかなり初期段階でステップ対ができて,それが安定に動いていることが分かる.しかし,*T*_{imp}の値がお おきくなるにつれて,初期にできたステップ対構造は不安定になり,さらに大きなステップ束を形成していることが分か る.いずれの場合にも,ステップ東同士が合体する過程で一時的に単独ステップが広いテラスを横切ることはあるが,基 本的に一度できたステップ束から単独ステップが分離されることはないことが分かる.



Fig. 7 Time evolution of step positions averaged in the *x*-direction: (a)–(f) for the same sample as we used in Figs. 6(a)–(f), respectively. τ_{imp} is (a) 3×10^4 , (b) 4×10^4 , (c) 5×10^4 , (d) 6×10^4 , (e) 7×10^4 , and (f) 8×10^4 .¹⁷⁾



Fig. 8 Snapshots of a vicinal face in late stages of step bunching, where $D_{\rm imp}/D_{\rm s}$ = (a) 10^{-5} (b) 2×10^{-5} , (c) 3×10^{-5} , (d) 4×10^{-5} , (e) 5×10^{-5} , and (f) 6×10^{-5} .¹⁷⁾

3.2.2 吸着原子と不純物の蒸発はあり不純物の表面拡散もある場合

これに対して,不純物の表面拡散が加わると,ステップ束の形成過程はどのように変化するだろうか?不純物が表面 拡散することが可能になれば,不純物が一定の場所に留まってステップの前進を妨げようとする効果が弱まることからス テップ束形成ができにくくなることが分かる.しかし,ステップ束形成ができにくくなるという点は,不純物の蒸発があ る系と同じようにも思える.両者には何か違いがあるだろうか?

Fig. 8¹⁷⁾ は不純物の表面拡散を考慮に入れたときのシミュレーションの結果である.吸着原子の寿命は**Fig. 6**と等し く、不純物の寿命は $\tau_{imp} = 10^5$ としているので、Fig. 6(f)よりも τ_{imp} は少し大きい.不純物の表面拡散係数 D_{imp} は吸着 原子の表面拡散係数 D_s に比べて十分に小さい. D_{imp}/D_s が小さいFig. 8(a)-(b)では、ステップがステップ東にきつく束 縛されているステップ束が形成される. D_{imp}/D_s が大きくなるにつれて徐々に束に含まれるステップ数は少なくなり、ス テップ束も緩くなっているようにも見える.ステップ束の形成過程における不純物の蒸発の効果と表面拡散の効果の違い は、平均のステップ位置の時間発展を見るとより鮮明に分かる.



Fig. 9 Time evolution of step positions averaged in the *x*-direction for the samples used in Fig. 8(a)–(f). $D_{\rm imp}/D_{\rm s}$ is (a) 1×10^{-5} , (b) 2×10^{-5} , (c) 3×10^{-5} , (d) 4×10^{-5} , (e) 5×10^{-5} , and (f) 6×10^{-5} ¹⁷⁾.

Figs. 9(a)-(f)¹⁷⁾ はそれぞれ Fig. 8(a)-(f) の平均のステップ位置の時間発展を描いたものである. Fig. 9(a) や (b) のよう に不純物の拡散係数が非常に小さいときには、小さいステップ束が形成して、それらが合体することでステップ束が大き くなる. これは、Fig. 8 の場合と変わりない. しかし、Fig. 9(d) のように不純物の拡散係数が大きくなると、一度合体し 大きくなったステップ束からステップや小さいステップ束が分離しはじめる. Fig. 9(f) になると、もはや大きなステップ 束は形成されない. 小さいステップ束が形成され、それらが衝突離脱を繰り返す.

4. まとめ

「ステップの前進を妨げるような不純物があることでステップ・バンチングが起きる」という古くから調べられている 筋書きのもとで、気相成長中の微斜面を想定して、不純物と吸着原子の表面拡散場を考慮した動的モンテカルロ・シミュ レーションによりステップ束形成を調べた.特に、ステップ束の形成過程における不純物の蒸発の効果が表面拡散の効果 とどのように違いうのかに着目した.吸着原子の蒸発がなく不純物の蒸発も表面拡散もない場合には、ステップがステッ プ束内にきつく束縛されている同じ大きさのステップ束が等間隔に現れた.吸着原子の蒸発も不純物の蒸発もあるが、不 純物の表面拡散がない場合にもステップがステップ束内にきつく束縛されている束が形成された.しかし、ここに不純物 の表面拡散が加わることで、ステップとステップ束の衝突分離が繰り返された.

不純物の蒸発も表面拡散も,ともに大きな束ができにくくなることは変わりないが,ステップ束の形成過程においては 違いがあった.その違いは次のような機構によると考えている.不純物の蒸発の場合があったとしても、一番不純物で汚 れている場所はステップ束の最下段のステップの前方であり,その一段上のステップの前方,つまり最下段のステップの 上段側のテラスは清浄である.そのため,もし最下段のステップがステップ束から逃れようとしてもその一段上のステッ プは追いつくことができる.一方で,不純物の表面拡散がある場合には,最下段のステップより一段上のステップの前方 にも不純物が表面拡散により現れることができる.そのために,最下段のステップがステップ束から逃れようとしてもそ の一段上のステップが追いつく効果が弱くなる.このことから,不純物の表面拡散がある系では,ステップとステップ束 の衝突分離が繰り返されるのではないかと考える.しかし,シミュレーションからは,これを裏付ける定量的なデータを 示すことがまだできていない.不純物の効果と一言で片づけられてしまう現象をもう少し詳細に理解したいと考えて本 研究を始めた.個人的には理解が部分的に進んだと感じている.しかし,ここで考えた非常に単純なモデルであってもま だ不明な点は多い.

謝辞

本稿をまとめるにあたり、科学研究費補助金(課題番号16K05470,18K04960,18H03839)の助成を受けた.ここに記し謝辞とする.

参考文献

- 1) 大川章哉:「結晶成長」(裳華房, 1977年)
- 2) 上羽牧夫:「結晶成長のしくみを探るその物理的基礎」(共立出版株式会社, 2002年)
- F. C. Frank: Growth and perfection of Crystals ed. R. H. Doremus, B. W. Roberts, and D. Trunbull, Wiley (Newyork, 1958).
- 4) D. Kandel and J. D. Weeks: Phys. Rev. Lett., 69 3758 (1992).
- 5) J. P. v. d. Eerden and H. Müller-Krumbhaar: Phys. Rev. Lett., 57 2431 (1986).
- 6) D. Kandel and J. D. Weeks: Phys. Rev. B, 49 5554 (1994).
- 7) M. Ranganathan and J. D. Weeks: Phys. Rev. Lett., 110 055503 (2013).
- 8) M. Ranganathan and J. D. Weeks: J. Crystal Growth, 393 35 (2014).
- 9) J. Krug, Euro. Phys. Lett. 60, 788 (2002).
- 10) J. Vollmer, J. Hegedüs, F. Grosse, and J. Krug, New J. Phys. 10, 053017 (2008).
- 11) J. F. Lutsko, A. E. S. Van Driessche, and M. A. Durán-Olivencia, Phys. Rev. Lett. 116, 015501 (2016).
- 12) M. Sleutel, J. Lutsko, and A. E. S. Van Driessche: Cryst. Growth Des., 18 171 (2018).
- 13) W. K. Burton, N. Cabrera, and F. C. Frank: Philos. Trans. R. Soc. London, Ser. A, 243 299 (1951).
- 14) Y. Saito and M. Uwaha: Phys. Rev. B, 49 10677 (1994).
- 15) M. Sato: J. Phys. Soc. Jpn., 86 114603 (2017).
- 16) M. Sato: Phys. Rev. E, 97 062801 (2018).
- 17) M. Sato: J. Phys. Soc. Jpn., 88 114801 (2019).
- 18) M. Sato, M. Uwaha, and Y. Saito: Phys. Rev. B, 62 8452 (2000).
- 19) G. Ehrlich and F. G. Hudda: J. Chem. Phys., 44 1039 (1966).
- 20) R. L. Schwoebel and E. J. Shipsey: J. Appl. Phys., 37 3682 (1966).
- 21) Y. Saito: Statistical Physics of Crystal Growth (World Scientific, Singapore, 1996).

(2020年1月27日受理)