

表面構造のエピタキシャル成長におよぼす影響

—Si(111)-7×7表面上のSiホモエピタキシャル成長を例に—

重 田 諭 吉

横浜市立大学理学部 ㊚ 236-0027 神奈川県横浜市金沢区瀬戸 22-2

(1998年1月20日受理)

Influence of Surface Structure on Epitaxial Growth

—An Example of Homoepitaxial Growth on Si(111)-7×7 Substrate—

Yukichi SHIGETA

Faculty of Science, Yokohama City University
22-2 Seto, Kanazawa-ku, Yokohama, Kanagawa 236-0027

(Received January 20, 1998)

The influence of surface structure on epitaxial growth, which has not been considered before in the crystal growth theory, is shown for the case of epitaxial growth of Si on Si(111)-7×7 substrate. In the lateral growth of islands on the 7×7 structure, the island size shows a discontinuous distribution according to the size of the unit cell of the surface structure, because the rate determinant process is the rearrangement of the surface lattice. This size distribution is understood by considering the activation energy of the rearrangement into the free energy change in the nucleation process. The surface structure also influences on the growth mode. In the initial growth stage, multilayer islands are formed because the lateral growth of the first layer is prevented by the stable 7×7 structure and some migrating atoms climb up the first layer and nucleate on it. However, the lateral growth of the second layer on the first one is not prevented and the layer-by-layer growth starts, because the structure of the first layer is composed of small domains with some metastable surface structures which is rather easier to rearrange than the 7×7 structure.

1. は じ め に

Kosselによって提案され、Burton-Cabrera-Frank¹⁾によって発展された結晶成長理論では、希薄環境相（気相や溶液相）の場合、(1) 原子または分子の気相から成長表面への付着（三次元拡散）、(2) 付着原子・分子の移動（表面拡散）、(3) 2次元核の形成（核形成）、そして(4) 2次元核への付着原子・分子の組み込み（沿面成長）、といった過程で成長機構を考えている。ここでは、核形成のおこる“核形成・成長機構”を例にあげたが、表面拡散の拡散距離が表面の平均的なテラス幅より十分に長い場合、2次元核の形成は起こらず、付着原子・分子はステップへ取り込まれ、成長は“ステップフロー成長機

構”となる。

これまでの結晶成長理論では、表面拡散や核形成・成長のメカニズムを考える場合、基板および成長層の構造として何の乱れもない理想的な結晶構造であることが、考察の前提となっている場合が多い²⁾。これに対し、表面にバルクとは異なる規則的な格子（表面構造）が形成されている場合はどうであろうか？ ここでは、表面に安定な7×7構造³⁾が形成されるSi(111)表面上へのSiのホモエピタキシャル成長を例に、従来の結晶成長理論にどのような影響を考慮すべきであるかを現象論的に考察し、次に、筆者のグループによる走査型トンネル顕微鏡（STM）と反射型高速電子線回折（RHEED）を用いた観察結果⁴⁻⁶⁾をもとに表面構造のエピタキシャル成長におよぼす影響について考えてみる。

2. エピタキシー成長における律速過程

エピタキシー成長は、前述のように、原子・分子の基板への付着→表面拡散→核形成→核の沿面成長という一連の過程で進行するが、ある過程の起こり難さによって全過程の進行速度が決められるような場合、その過程を律速過程と呼んでいる。我々が成長を観察する場合、基板上的原子・分子の動きは観測する時間間隔に比べ非常に速いので、観察結果は律速過程の段階で止められた状態を示している場合が確率的に高い。したがって、観察結果は結晶成長の律速過程に関連した情報を多く含んでいると考えられる。

核形成・成長機構の流れの中で、一般に、一番起こり難いのは平坦な面に新たな2次元島を作り出す核形成であり、この核形成が律速過程となる。核形成の駆動力は、個々の原子・分子の気体状態と結晶状態との自由エネルギーの違いから来ている。ここでは、話を簡単にするために、2次元島は半径 r の円盤状に形成され、結晶表面は格子定数 a の正方格子とする。この2次元島の形成により結晶相とその周りの環境相を含めた全系の自由エネルギーの変化、 $G(r)$ 、は

$$G(r) = -\frac{\Delta\mu\pi r^2}{a^2} + \frac{\varepsilon_s \cdot 2\pi r}{a} \quad (1)$$

で表される^{1,2)}。ここで、 $\Delta\mu$ は原子・分子の結晶相と環境相との化学ポテンシャルの差に相当し、右辺の第1項は2次元島の形成による自由エネルギーの減少を表している。これに対し、第2項はこの島の縁を囲むステップの形成による自由エネルギーの増加を表しており、 ε_s は単原子・分子当たりのステップエネルギーである。 $G(r)$ は Fig. 1 (a) の実線で示すように、半径 r の小さいところでは成長と共に増加し、ある半径(ρ_c : 臨界半径)

$$\rho_c = \frac{a\varepsilon_s}{\Delta\mu} \quad (2)$$

を越えると成長と共に減少する。したがって、臨界半径における自由エネルギー G_c

$$G_c = \frac{\pi\varepsilon_s^2}{\Delta\mu} \quad (3)$$

が2次元核形成の活性化エネルギーまたは核形成バリアとなる。化学ポテンシャルの差が大きいか、ステップエネルギーが小さい場合に、活性化エネルギーは小さくなり、核形成は起こりやすくなる。

この議論では、結晶表面を理想表面(結晶内部と同じ周期性を保つ表面)としているが、Si(111)表面のように複雑かつ安定な表面構造を形成する場合には、どのようなことを考慮すべきであろうか?

Si(111) 表面に形成される 7×7 表面構造³⁾を Fig. 2 に

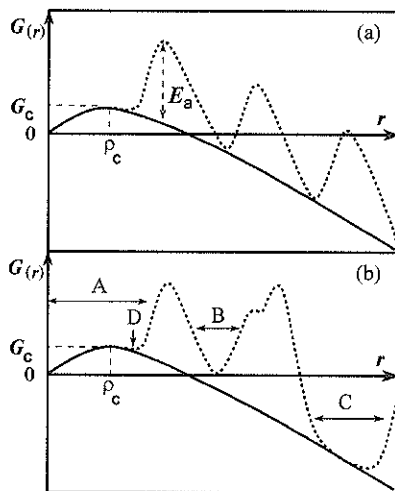


Fig. 1 Free energy of formation, $G(r)$, of a two-dimensional nucleus as a function of its radius of r . (a) Activation energy, E_a , of the rearrangement of the surface structure is considered. (b) The geometric configuration of the 7×7 structure is also considered.

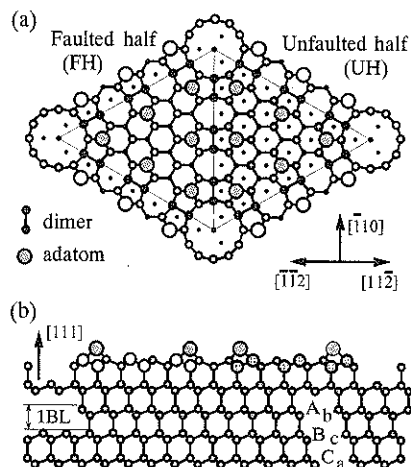


Fig. 2 Schematic drawing of the 7×7 DAS structure composed of Dimer, Adatom and Stacking-fault layers. (a) Top view. (b) Side View; the stacking of diamond structure (...AbBcCa...) is shown along $[111]$ direction.

示す。この表面の単位構造は、Si(111) 理想表面の7倍の周期を持つ菱形で、2量体(ダイマー:dimer)の列によって囲まれている。また、このダイマー列により、単位構造は2つの正三角形に仕切られている。Fig. 2 (a)の左側の頂点が $\langle \bar{1}\bar{1}2 \rangle$ 方向群($[\bar{1}\bar{1}2]$, $[\bar{1}2\bar{1}]$, $[2\bar{1}\bar{1}]$)を向いた正三角形の内側は、積層欠陥層(stacking fault layer)となっており、Faulted half (FH)と呼ばれてい

る。このFHは、Fig. 2 (b) の断面図に示すように、Si結晶（ダイヤモンド構造）の〔111〕方向に沿った積層構造（ $\cdots\text{AbBcCaAb}\cdots$ ）がこの層で乱れているが、(111)面内ではダイマー列により正常な積層領域（頂点が〈112〉方向群を向いた正三角形）と整合している。この正三角形をUnfaulted half (UH) と呼んでいる。これら2種類の正三角形の中にそれぞれ6個の吸着原子（アダトム：adatom）があることで不飽和結合（dangling bond）の数を減らし、表面エネルギーを下げる役目をしている。そして、単位胞の各頂点には、ダイマーを含む5員環で囲まれた大きな穴（コーナーホール：corner hole）が形成されている。このように、dimer, adatom, stacking-fault layerを含んでいるためDAS構造と呼ばれている。

この7×7表面上にエピタキシャル成長する場合、成長層で覆われた部分の原子は、バルクのダイヤモンド構造の位置（正常な積層構造）に組み替わる必要がある。その場合、積層欠陥層とそれを囲むダイマー列を構成する原子の再配列が必要であり、その原子数は1つのFH当たり30個以上におよぶ。この構造組み替えは、厳密には、個々の原子が順次組み替えを行って進行すると考えられるが、その途中の準安定状態のエネルギーが高いためか、7×7構造の形成・消滅のSTM観察では、ほとんどの場合ハーフユニット（特にFH）を単位に形成・消滅する様子のみが観察されている^{7, 9)}。そこで、ここでは構造組み替えの過程をひとまとめにして考え、FHの構造組み替えに必要な活性化エネルギーを E_a として話を進めることにする。いま、 E_a が G_c よりもかなり大きい場合、2次元核形成・成長にともなう自由エネルギーの変化は、Fig. 1 (a) に点線で示したような変化をすると考えられる。ここでは、臨界核の直径、 $2\rho_c$ は表面構造の周期より小さいと仮定しており、また、表面構造が周期的であることから、 E_a によるピークを周期的に簡略化して描いた。しかし、実際のFHの幾何学的配置からピークの間隔は等間隔の単純なものではないことが予想される。例えば、2つ目のFHの構造組み替えを考えると、1番目と2番目のFHが共有するコーナーホールでは、このホールの縁を形成する原子の過半数が組み替わることになる。そのような場合、このコーナーホールを共有する第3のFHの組み替えが連鎖的に起こることが考えられるので、自由エネルギーの変化はFig. 1 (b) の点線で示すように、第2、第3の構造組み替えが一部重なるようになるであろう。

この図のように表面構造の構造組み替えに必要な活性化エネルギーが核生成バリアに比べかなり大きい場合、成長の律速過程は表面構造の組み替え過程となるであろう。そして、観察結果は、律速過程で止められたバリア

の間の状態を捉える確率が高くなる。その結果、成長初期段階の2次元島のサイズは基板の表面構造の構造単位を反映して離散的となることが予想される。例えば、Fig. 1 (b) で示したサイズ領域A, B, Cの場合は：（領域A） G_c の壁を乗り越え核を形成しても E_a の壁（基板の表面構造の組み替え）を乗り越えられない。また、 G_c と E_a の間の谷Dが余り深くない場合、形成した2次元核は安定に存在できず、孤立原子へと分散していく確率が高い；（領域B）1つのFHを完全に再配列させた上に2次元島が形成される；（領域C）あるコーナーホールを中心に3つのFHが構造組み替えされ、その上に2次元島が形成される。このように、2次元島のサイズ分布が連続ではなく離散的になることが予想される。また、この E_a の山は r の大きな領域でも存在するため、成長した2次元島でもその縁は基板のFHで囲まれる確率が高いことも予想できる。

3. 成長のSTM, RHEED による観察

Si(111) 面上のSiの成長は、Fig. 2 (b) に示したような積層構造（ $\cdots\text{AbBcCa}\cdots$ ）であるため、間隔の狭い2層（例えばA面とb面）が対になって層成長する。この対の層をバイレイヤー（bilayer: BL）と呼んでおり、層成長の蒸着量あるいは平均膜厚（ d ）の単位として、1 BL（原子数約 1.57×10^9 atom/m²あるいは高さ約0.31 nm）を用いることにする。

3.1 核形成と成長⁶⁾

安定な7×7構造を形成するSi(111) 表面にSi膜を成長させる場合、前に述べたように、7×7構造の構造組み替えに必要な E_a が G_c より大きければ、層の成長は7×7構造のダイマー列のところで止められている時間が長く、そのような場所を多く観察するはずである。Fig. 3 (a), (b) は、基板温度（ T_s ）を380℃に保ったSi(111) 表面にSi膜を0.1 BL蒸着し、直ちに加熱を止め、その後室温に戻し観測したSTM像とその模式図である。この試料を冷却表面と呼ぶことにする。この条件では、高さが1 BLの2次元島として、原子数が100個前後の三角形の島（M）や200個以上の大きな三角形の島（L）が形成されている。これに加え、高さが1 BLに満たない、原子数として数個程度と思われる、小さい白いコントラスト（S: Fig. 3 (b) には示していない）が多数観測される。

ここで形成されている2次元島の特徴をFig. 3 (b) の模式図を参考にあげてみると：(1) 島のサイズが離散的である；(2) 2次元島が覆っている基板のFHの数（構造組み替えをしたと考えられるFHの数）に注目すると、Mでは1個、Lでは1つのコーナーホールを共有する3

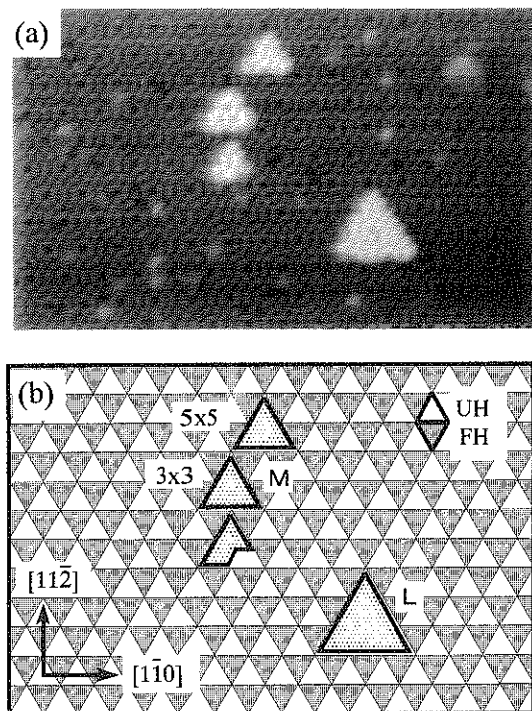


Fig. 3 (a) STM image ($37 \times 23 \text{ nm}^2$) from a quenched film ($d = 0.1 \text{ BL}$) deposited at 380°C ⁶⁾ and (b) its schematic drawing.

個のFHを覆っている；(3) 2次元島は構造組み替えしたFHを囲むUHの上まで成長しており、その縁は基板のFHによって囲まれている。このため、2次元島の形状は頂点が $\langle 11\bar{2} \rangle$ 方向群を向いた正三角形となっている。これらの特徴をFig. 1 (b)に示した自由エネルギーの図と対応させてみると、2次元島MはFig. 1 (b)のサイズ領域Bに、島Lはサイズ領域Cに対応していることがわかる。したがって、この温度では、基板のFHの構造組み替えが2次元島の沿面成長の律速過程になるほど E_a が大きいといえる。また、2次元島の形状から、UHの上への沿面成長には大きなバリアは存在しないことがわかる。

次に核形成が関係するサイズ領域Aについて考えてみる。高さが1BLに満たない小さな集合体Sは、原子数にして10個に満たないであろう物がほとんどを占めている。一方、高さが1BL以上の島は大きさが最小の島でも原子数にして50以上からなっている。この間の原子数の集合体が観察されないことから、ちょうどFig. 1 (b)の谷Dが浅い場合のように、核形成バリア G_c を乗り越え、一旦核形成した核も、この温度では、成長できずに再び拡散していくと考えられる。

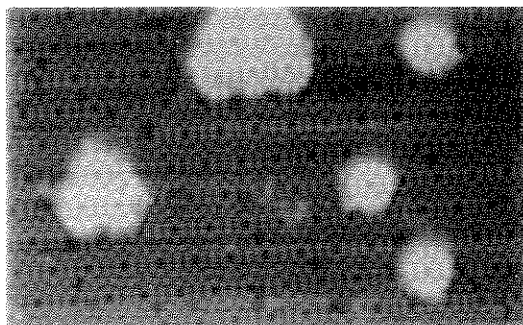


Fig. 4 STM image ($37 \times 23 \text{ nm}^2$) from an annealed film ($d = 0.1 \text{ BL}$) deposited at 380°C .⁵⁾

Fig. 4に $T_s = 380^\circ\text{C}$, $d = 0.1 \text{ BL}$ の成長をさせ、原子の供給を止めた後、温度を10分間維持した場合のSTM像を示す(焼鈍表面)。この場合、冷却表面で見られた小さな集合体Sの数密度は1/10以下に減少している。また、それよりも大きなサイズの島としては、図の右側に見られる原子数が約160個ほどの円形の島(高さ1BL)が多数観測され、冷却表面の島Mのような中間的なサイズの島は観測されない。したがって、Sのような小さな集合体は、この温度では、安定に存在できず、集合体を形成する原子は拡散し、やがて島Mなどに吸収され円形の島を形成したと考えられる。

この円形の島は、基板のUH, FHをそれぞれ3個ずつ覆う位置に形成され、その表面には 5×5 -DAS構造が3ユニット分形成されている⁵⁾。また、この島はちょうど冷却表面の大きな島Lの3つの頂点部分(UHを覆う部分)が削れたものに対応しているので、島Lの頂点が削れて形成される場合もあるであろう。

この焼鈍表面の円形の島のサイズについても、Fig. 1 (b)の自由エネルギーのグラフを用いて定性的に説明できる。焼鈍表面をこの温度における平衡状態と考えると、 $A \rightarrow B$ および $B \rightarrow C$ の方向ではバリアを越えることができるが、一旦、Cの領域に入ると $C \rightarrow B$ の方向のバリアは高く越える確率が低くなり領域Cで落ち着いてしまう。したがって、FHを3つ組み替えた領域Cまたはそれ以上の大きさの島が大多数を占めることになる。

冷却表面と焼鈍表面で形成される島の形の違いは構造組み替えしたFHに接するUHの上に形成される層の有るか無いかの違いである。冷却表面では、ほとんどの場合、FHに接するUHの上にも層が成長して三角形の島となるが、焼鈍表面ではそれが削られている。この違いは、成長後原子の供給を止め原子密度が減少することによる $\Delta\mu$ の変化によって定性的に説明できる⁹⁾。例えば、環境相の蒸気が理想気体と見なされる場合、 $\Delta\mu$ は

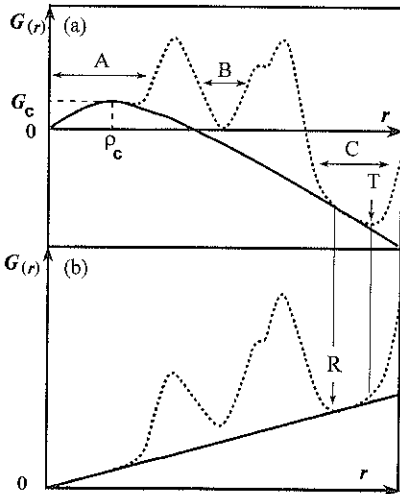


Fig. 5 Free energy of formation, $G(r)$, of a two-dimensional nucleus as a function of its radius of r . (a) During deposition; the minimum in the region C is indicated by T. (b) After deposition; the minimum position is shifted to smaller size R.

その圧力 (P) と温度 T_s における飽和蒸気圧 (P_0) により

$$\Delta\mu = k_B T_s \ln \left(\frac{P}{P_0} \right) \quad (4)$$

と表せる²⁾。ここで、 k_B はボルツマン定数である。いま、原子の供給を止めた場合を考えると、 $P \approx P_0$ となり、 $\Delta\mu$ は非常に小さくなる。したがって、焼鈍表面では、式(2)、式(3)の臨界半径 ρ_c および核形成バリア G_c が非常に大きくなることがわかる。

Fig. 5 の (a), (b) に成長中および原子の供給を止めた後に圧力が飽和蒸気圧に近くなった場合の自由エネルギーの変化を示す。実線で示す式(1)からの寄与は、(a) では ρ_c を越えると単調減少するが、(b) では ρ_c および G_c の増大により単調増加となることが予想される。したがって、領域 C 内における安定な 2 次元島のサイズは、原子の供給を止めると、Fig. 5 (a) の T から Fig. 5 (b) の R へと小さくなることが説明できる。ここでは、2 次元島の UH 上への成長に関して特別なバリアは無いとしているが、実際の自由エネルギーの変化には、島の縁の形状変化による微細構造が現れると思われる¹⁰⁾。しかし、これを考慮したとしても、2 次元島の形が円形(縁の長さが最短でステップエネルギーが小さい)になる結果は理にかなっているといえる。

成長後、原子の供給を止め原子密度が減少すると三角形状の島の頂点部分から原子が離れ角が丸くなることは、サイズが数十 nm と大きな島についても Voigtlander

ら¹¹⁾によって STM 観察されており、成長中の非平衡系と成長後の平衡系では表面形状が異なることに注意すべきである。

3.2 表面構造の成長モードへの影響^{4, 6)}

エピタキシー成長の律速過程が FH の構造組み替え過程であることから、成長の初期段階では 2 次元島のサイズが離散的になることを示したが、成長がもう少し進んだ段階では、どのような影響が起こるであろうか?

Fig. 6 の (a)~(f) は、 $T_s=250^\circ\text{C}$ で Si(111)- 7×7 表面に Si 膜をそれぞれの段階 ($d=0, \frac{1}{4}, \frac{3}{4}, 1\frac{1}{4}, 1\frac{3}{4}, 2\frac{1}{4}\text{BL}$) まで成長させ、その後室温で観察した STM 像を示す。ここで、注目すべき点は、Fig. 6 (d) の $d=1\frac{1}{4}\text{BL}$ の成長段階で: (1) 暗いコントラストの基板がこの蒸着量でも覆い隠されておらず、第 2 層 (白いコントラスト) の核形成および第 3 層の核形成が始まっている; (2) 灰色のコントラストの第 1 層の縁は直線的な箇所が多く観測される; (3) その縁の方向はダイマー列と平行な $\langle 110 \rangle$ 方向群である。

これに対し、(e) の $d=1\frac{3}{4}\text{BL}$ の成長段階では、基板は完全に第 1 層 (黒) で覆い尽くされ、第 2 層 (灰色) が成長しているが、その輪郭は円形の島が結合成長したような滑らかな外形を示している。そして、第 2 層の上の第 3 層 (白) の核形成密度が Fig. 6 の (b), (c) で見られる基板上の核形成密度に比べ著しく低いことがわかる。ここで観測される第 3 層の核は、(d) の段階で既に核形成されていたもので、(d) から (e) の段階では、新たな核は形成されないといえる⁴⁾。このことは、第 2 層がほぼ完全に第 1 層を覆った Fig. 6 の (f) の STM 像で、第 3 層 (白) の島のサイズに 2 種類あり、大きい島の密度は (e) の段階とほぼ同じであることから推測できる。そして、小さい島は第 2 層が第 1 層をほぼ覆い尽くした後に核形成したと考えられる。

したがって、成長段階 (c) までは多層からなる 3 次元的な島状成長をしているが、段階 (d) 以後は層状成長 (layer-by-layer growth) をしており、成長のモードが変化したことを示している。この変化も成長中の表面構造の変化によって引き起こされている。基板表面は安定な 7×7 構造が形成されており、第 1 層の沿面成長は、表面構造の組み替えを必要とするため、単位構造の境界であるダイマー列に沿って止められる傾向がある。沿面成長が阻害されると表面上の原子密度が上昇し、第 1 層の上に第 2 層の核形成が起こり、結果的に、多層からなる 3 次元的島が形成される。

一方、成長層の表面は、Fig. 7 に示すように、 7×7 構造の他に 2×1 , 2×2 , $c2\times 4$, 5×5 , 9×9 構造といった準安定な表面構造が形成され、それぞれのドメインサ

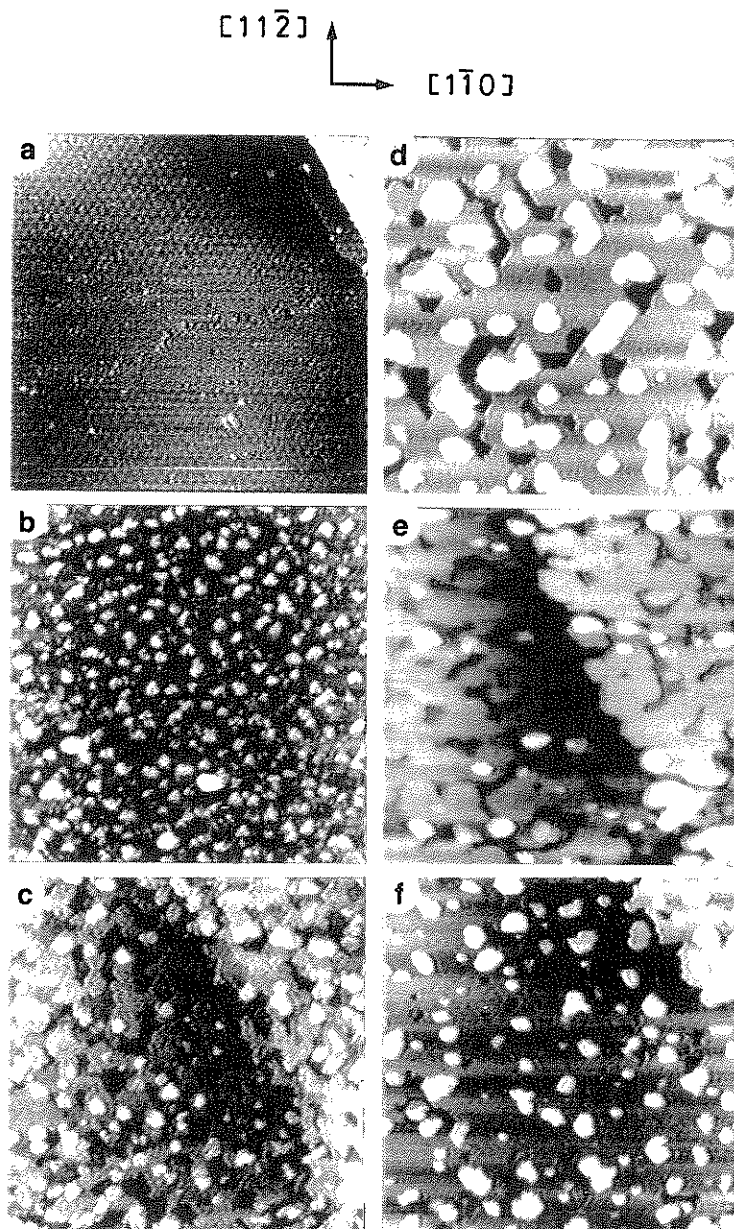


Fig. 6 STM images ($100 \times 100 \text{ nm}^2$) of (a) Si(111) substrate, (b) after the deposition of $\frac{1}{4}$ BL at 250°C , (c) $\frac{3}{4}$ BL, (d) $1\frac{1}{4}$ BL, (e) $1\frac{3}{4}$ BL and (f) $2\frac{1}{4}$ BL, where (b)–(f) correspond to the stages (B)–(F) in RHEED intensity change in Fig. 8, respectively.⁴⁾

イズは数 nm と小さく、その境界は非常に乱れた構造を示している。このような乱れた構造を持つ表面の構造組み替えは、基板の 7×7 構造に比べ容易であるため、この上の層の沿面成長は支障無く進行できる。このため、基板に到達した原子のほとんどが層の沿面成長に寄与し

新たな核は形成されない。そして、層が完成すると、表面に到達した原子は層成長に寄与できなくなるため、原子密度が上昇し次の層の核形成が始まる。このように、成長は2次元層が1層ずつ核形成・成長する層成長モードとなっている。

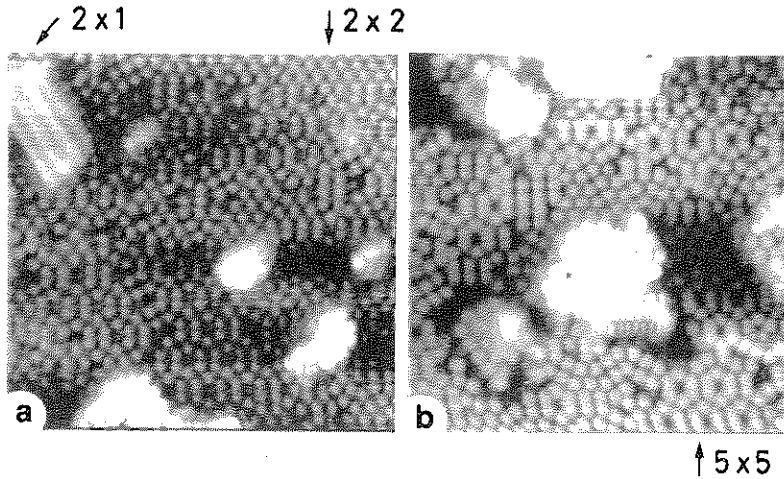


Fig. 7 Close up STM images ($20 \times 20 \text{ nm}^2$) of the growing surface. The 2×2 , 5×5 and 2×1 structures are indicated by arrows.⁴⁾

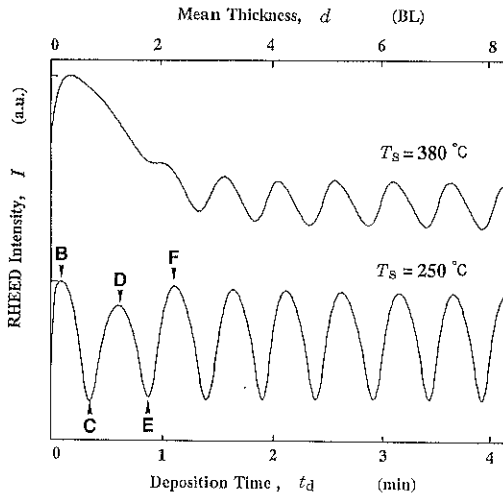


Fig. 8 Changes in RHEED intensity (I) during the growth of Si layer as a function of deposition time (t_d) on Si (111)- 7×7 substrate held at temperatures of 250°C and 380°C . The corresponding mean thickness (d) is given in the upside.⁶⁾

この成長モードの変化は、Fig. 8に示す成長中の RHEED の鏡面反射強度 (I) の変化にも現れている。図には $T_s = 250^\circ\text{C}$ のデータに加え $T_s = 380^\circ\text{C}$ の場合も示してある⁶⁾。横軸は蒸着時間 (t_d) または図の上側に示す d である。 $T_s = 250^\circ\text{C}$ のデータの B~F の矢印は Fig. 6 の (b) ~ (f) の STM 像の各成長段階に対応している。 $T_s = 250^\circ\text{C}$ の場合、成長段階 (E) 以降に見られる規則的な変化は 1 BL の成長時間に対応して規則的に振動している。一方、成長初期の段階では、始めの極小 (C)

と 2 番目の極大 (D) の強度が減少し、2 番目の極小 (E) を過ぎた約 2 BL の成長後、規則的な振動が始まっている。初期の RHEED 強度の減少は、STM 観察から、3 次元的な島の形成によるものであることがいえる。そして、層成長モードに対応する規則的な振動は、初期に形成された 3 次元的な島 (高さ 2 BL) の間の凹凸を埋め尽くす $d \sim 2 \text{ BL}$ 以降に始まっていることがわかる。

一方、 $T_s = 380^\circ\text{C}$ では、初期の非周期的な振る舞いは約 3 BL まで続いている。この場合、基板温度が多少高いために成長層の結晶性が向上し、第 1 層の表面は 7×7 構造のみで覆われ、そのドメインサイズも数十 nm と大きい。このため、第 2 層の沿面成長も阻害され、成長初期に形成される 3 次元的な島の高さは 3 BL となる。しかし、第 2 層目以後の成長層の表面は、主に、 7×7 構造と 5×5 構造の小さなドメインから形成されており、これらの表面上では、層の沿面成長は支障無く進行できる。このため、 $T_s = 380^\circ\text{C}$ では、初期に形成された高さ 3 BL の 3 次元的な島による凹凸を埋めた後の $d \sim 3 \text{ BL}$ 付近から RHEED 強度の規則的な振動が始まり、 $T_s = 250^\circ\text{C}$ の場合に比べ、周期的な振動を始める平均膜厚が 1 BL 厚くなる。

Fig. 9 に、 $T_s = 380^\circ\text{C}$ の場合の STM 像から見積もった各成長層の被覆率と d の関係を示す。図中の点線は、第 1 層が完成してから第 2 層の成長が始まる、理想的な層状成長の被覆率変化を表している。この図から、 $d \sim 1 \frac{1}{4} \text{ BL}$ で、各層の被覆率は、第 1 層が約 85 %、第 2 層が約 45 %、第 3 層が約 5 % と第 3 層目までの成長が始まっていることがわかる。一方、第 4 層の成長は、第 3 層がほぼ完成される $d \sim 3 \text{ BL}$ 付近から始まっており、

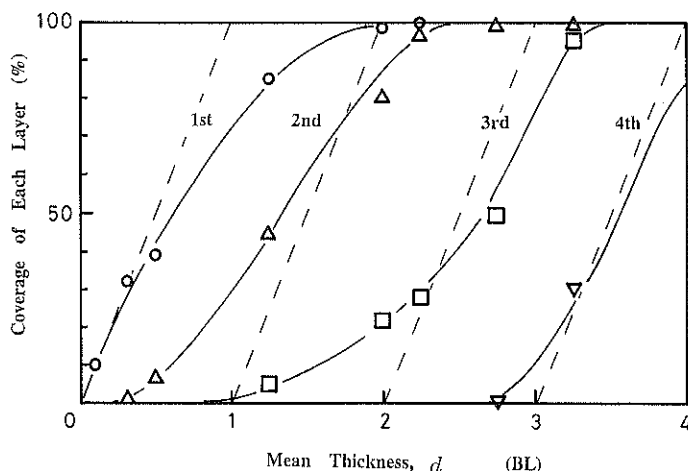


Fig. 9 Changes in the coverage occupied with each layer as a function of d . Dotted lines indicate the relationship when the overall growth is according to the ideal layer-by-layer growth.⁶⁾

RHEED 強度の周期的な振動の始まりと良く対応する⁶⁾。

このように、表面構造の違いがその上の層の沿面成長に大きく影響を与える場合、表面構造が成長モードにまで影響を与えることがあり、膜成長を議論する上で無視できない要素の1つとなる。また、ここで紹介したケースでは、島状成長から層状成長へ変化しており、従来から知られている3つの成長モード (1) 島成長, (2) 層成長, (3) 層成長から島成長に変化する Stranski-Krastanov 成長, とは異なった成長モードであり、特異的である。

4. む す び

ここでは、結晶成長の議論の中でこれまでにあまり考慮されていなかった、表面構造のエピタキシー成長に与える影響について、 7×7 構造という安定な表面構造を形成する Si(111) 表面上の Si 膜の成長を例に、最近の実験結果をもとに述べてみた。この Si(111)- 7×7 表面は、非常に複雑で特異的な表面であるが、ここで考えた、層の沿面成長に伴う基板あるいは成長表面の構造組み替えの問題は、表面構造を形成するすべての結晶表面で多かれ少なかれ発生する問題であるといえる。特に、半導体のように結合に方向性のある結晶表面では、特有の結合状態を形成している場合が多く、表面構造を組み替えるためには一旦その結合を切る必要がある。そのためのエネルギー障壁は核形成バリアに比べ大きな値となる可能性があり、ここで考えたような影響を考慮する必要があるであろう。

終わりに、ここで紹介した研究の推進にあたり、共同

研究者である猿渡治郎、藤野裕之の両氏そして馬来国嗣教授のご尽力に感謝致します。また、この原稿をまとめる際に、The University of Birmingham で結晶成長の講義を数回させて頂いたことが非常に役に立った。講義を企画して下さい、Nanoscale Physics Research Laboratory の Professor R.E. Palmer に感謝いたします。

文 献

- 1) W.K. Burton, N. Cabrera and F.C. Frank: Phil. Tran. Roy. Soc. A **243**, 299 (1950~1951).
- 2) たとえば、大川章哉: 応用物理学選書 2 “結晶成長” (裳華房, 1977).
- 3) K. Takayanagi, Y. Tanishiro, S. Takahashi and M. Takahashi: Surf. Sci. **164**, 367 (1985).
- 4) Y. Shigeta, J. Endo and K. Maki: Phys. Rev. B **51**, 2021 (1995).
- 5) Y. Shigeta, J. Endo and K. Maki: J. Cryst. Growth **166**, 617 (1996).
- 6) Y. Shigeta: Surface Review and Letters **5**, 865 (1998).
- 7) K. Miki, Y. Morita, H. Tokumoto, T. Sato, M. Iwatsuki, M. Suzuki and T. Fukuda: Ultramicroscopy **42-44**, 851 (1992).
- 8) M. Hoshino, Y. Shigeta, K. Ogawa and Y. Homma: Surf. Sci. **365**, 29 (1996).
- 9) Y. Shigeta: 投稿中。
- 10) 例えば、B. Lewis: “Crystal Growth” International Series on the Science on the Solid State, Vol. 16, ed. by B. Pampin (Pergamon Press, Oxford, 1980) p.35.
- 11) B. Voigtländer and T. Weber: Phys. Rev. Lett. **77**, 3861 (1996).