

Si(111) 7×7 表面上のアイランドとステップ終端部の 走査トンネル顕微鏡観察

池田淳子・島田 亙・水野清義・栃原 浩

九州大学大学院総合理工学府・物質理工学専攻 ☎ 816-8580 福岡県春日市春日公園 6-1

(2000 年 12 月 14 日受付; 2000 年 12 月 21 日掲載決定)

Scanning Tunneling Microscopy Observation of Small Si Islands and Atomic Steps on Si(111) 7×7

Junko IKEDA, Wataru SHIMADA, Seigi MIZUNO and Hiroshi TOCHIHARA

Department of Molecular and Material Science, Kyushu University
6-1 Kasugakouen, Kasuga, Fukuoka 816-8580

(Received December 14, 2000; Accepted December 21, 2000)

Small Si islands and atomic steps on Si(111) 7×7 have been observed by scanning tunneling microscopy (STM). At the edges of both structures, we observed characteristic elliptic double protrusions in the STM images. We have proposed atomic structural models of the islands and steps. Partial collapse of the islands during STM observation is well explained by the proposed model. It is concluded that the double protrusions are caused by the distortion of the 3×3 half unit-cell (HUC) of the dimer-adatom-stacking fault structure. This HUC has a specific structure that only one side of the triangular HUC is connected with a neighboring 3×3 HUC.

1. は じ め に

加熱により清浄化した Si(111) 表面は、二量体 (Dimer), 付加原子 (Adatom), 積層欠陥 (Stacking fault) の構成要素から名付けられた DAS 構造に再構成する。この再構成表面は、固体内部の構造がそのまま露出した理想終端表面の単位格子に対して 7 倍の周期性をもち、Si(111) 7×7 DAS 構造と呼ばれている^{1,2)}。この原子構造モデルを Fig. 1 (a) に示す。単位格子を太線で囲んだ。単位格子は、積層欠陥のある半単位格子 (Faulted half) と正常積層の半単位格子 (Unfaulted half) の 2 つの正 3 角形から成り立っている。Si(111) 7×7 DAS 表面を走査トンネル顕微鏡 (Scanning Tunneling Microscopy: STM) で観察すると、付加原子が輝点として観察される。また、負のサンプルバイアスで STM 観察を行うと、Faulted half が Unfaulted half よりも明るい輝点として観察される³⁾。

Si(111) 7×7 DAS 表面の再構成過程および成長過程を理解するために多くの STM 観察が行われてきた⁴⁻¹²⁾。その結果、Si(111) 表面には 7×7 だけではなく、3×3, 5×5, 9×9 などの DAS ファミリーが狭いドメインを形成することが見出された。しかし、これらは準安定な構造であり、アニーリングにより消失することが多い。

本研究では、Si(111) 7×7 表面に Si 原子を蒸着したときに形成する小さな二次元島状構造 (ここではアイランドと呼ぶ) および原子ステップの STM 観察を行い、今までに報告されていない長丸型の 2 つの輝点を発見した。STM 像の解析をもとにしたアイランドと原子ステップの原子構造モデルを提案するとともに、Si(111) 7×7 上のホモエピタキシャル成長の初期過程に関して議論した。

2. 実 験 手 法

2.1 アイランド

Si 原子を蒸着した Si(111) 表面を STM (日本電子

E-mail: tochihar@mm.kyushu-u.ac.jp

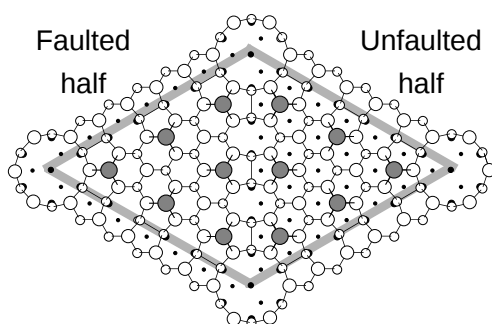
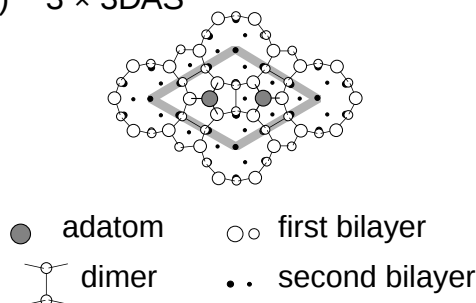
(a) 7×7 DAS(b) 3×3 DAS

Fig. 1 Top views of the unit cells of the dimer-adatom-stacking fault (DAS) structure on Si(111). (a) 7×7 DAS structure, (b) 3×3 DAS structure. Circles represent Si atoms. The closer these atoms are to the surface, the larger the diameters of the circles. Unit cell are outlined by thick lines.

JSPM-4500 XT) で観察した。チャンパー内の真空度は 7.5×10^{-11} Torr である。試料を 1250 °C まで加熱して清浄表面を得た。353 °C に保持した $S\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 7×7 表面に Si 原子を蒸着し、表面上に形成したアイランドの STM 観察を行った。

2.2 ステップ

$S\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 7×7 表面の原子ステップを別の STM (ユニソク USM-901 型) で観察した。チャンパー内の真空度は 1.0×10^{-11} Torr である。試料を 1200 °C まで加熱した後、室温まで急冷し STM 観察を行った。

3. 実験結果および議論

3.1 アイランド

Si を蒸着した $S\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 表面に形成したアイランドの STM 像を Fig. 2 に示す。Fig. 2 (a), (b) はサンプルバイアス -1 V, Fig. 2 (c), (d) はサンプルバイアス +1 V で観察した。(a)~(d) は全て同じ箇所を観察した。(a), (c) を観察した 5 分後に (b), (d) を観察した。この 5 分の間にアイランドの一部は崩壊していた。Fig. 3 (a),

(b) に STM 像 (Fig. 2 (c) と同じ) とラインプロファイルをそれぞれ示す。Fig. 3 (b) で示した白丸, 黒丸, 斜線入りの丸はそれぞれ STM 像の輝点对应している。白丸, 斜線入りの丸に対応する輝点が円形であるのに対し, 黒丸に対応する輝点は長丸型である。長丸型の輝点は 2 つ並んでおり (2 重輝点と呼ぶ) Fig. 2 (c), (d) で 10 組観察できる。 $S\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 7×7 DAS 表面では, このような長丸型の輝点は観察されない。明るい輝点は, Si (111) 7×7 表面に Si 原子を蒸着したときに出現したので, これらはシリコンアイランドを構成していると考えられる。実際, Fig. 3 (b) のラインプロファイルから, 7×7 表面の輝点 (斜線入りの丸) とアイランドの明るい輝点 (白丸) の高低差は 0.31 nm であり, これは $S\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 表面の原子ステップの高さに一致しているので, アイランドは $S\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 面のパイレイヤー 1 層分だけ $S\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 7×7 表面より高くなっていることがわかる。しかし, Fig. 3 (a) において, 基板表面とアイランドを比較するとわかるように, アイランドは明らかに 7×7 DAS 構造ではない。そこで, アイランドは他の周期性をもつ DAS 構造であると考えた。 $S\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 表面には 7×7 DAS 構造だけではなく, セクション 1 で述べたように 3×3 , 5×5 , 9×9 などの DAS 構造による狭いドメインが形成することが知られている。今回観察したアイランドは, 3×3 DAS 構造であると考えると, 輝点の配置などをよく説明できる。ここで, 3×3 DAS 構造モデルを Fig. 1 (b) に示す。また, Fig. 2 (a), (b) の充満状態像で, アイランドを構成する 3×3 DAS 構造の Faulted half が Unfaulted half よりも明るい輝点として観察されていることもアイランドが 3×3 DAS 構造であることを示している³⁾。これまでに, 3×3 DAS のアイランドの STM 観察が報告されている⁴⁾。

Fig. 4 に, Fig. 3 (a) のアイランドの原子構造モデルを示した。Fig. 4 (a) は表面を上から見た図, Fig. 4 (b) は Fig. 4 (a) の矢印での断面図である。Fig. 4 (a) の網掛部分がアイランドに相当する。アイランドは 7×7 DAS 表面の上に形成しているが, その真下は正常積層に変換している。また, アイランドのみの原子構造モデルを Fig. 5 に示す。Fig. 4, Fig. 5 とともに矢印部分が Fig. 3 (b) のラインプロファイルと一致する。Fig. 5 (a) で網掛した丸が Fig. 3 (a) の STM 像の輝点を示している。

しかし, Fig. 4 の原子構造モデルは Fig. 3 (a) の STM 像と厳密には一致していない。Fig. 4 の付加原子 D, E, F, G はそれぞれ, 1 つの輝点が観察されるはずであるが, 実際には 2 重輝点が見えている。2 重輝点は基板表面とアイランドの付加原子の中間の高さにある。2 重輝点のうち, より外側にある輝点の方が低い (Fig. 3 (b))

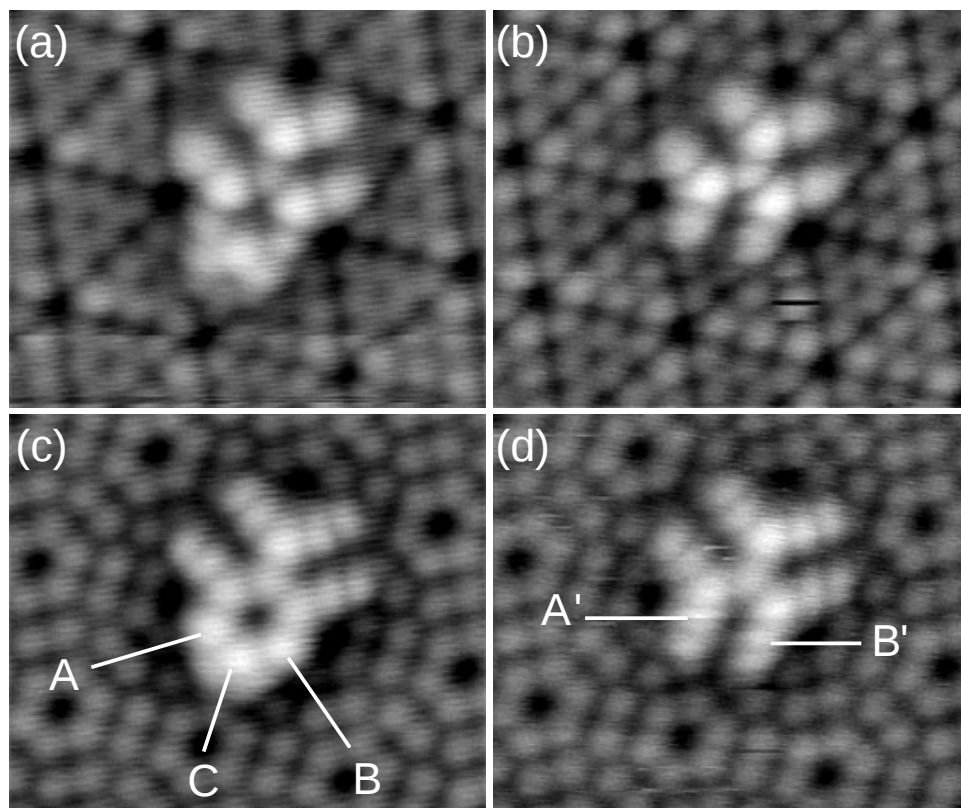


Fig. 2 STM images of a Si island on Si(111) 7×7 at 353 K. (a), (b): filled-state images; (c), (d): empty-state images. (b) and (d) were taken five minutes after (a) and (c). (a)–(d) show the same region. For “A”, “B”, etc. see text.

参照)。これまでに報告されていない2重輝点がなぜ観察されたのかについては、以下のように推測している。2重輝点(黒丸)が見えるのは 3×3 DASの半単位格子(正三角形)の3辺の二量体のうち、1辺の二量体のみが他の半単位格子と結合しているケースに限られる(Fig. 4 参照)。この場合、他の2辺は隣と結合していないので、 3×3 DAS 構造形成によるひずみがより大きく現れるので、表面から反るような構造に変位するのではないだろうか。その結果、半単位格子の付加原子は結晶側かつアイランドの内側に変位し、それに従って、残り2辺の二量体(隣の半単位格子と結合していない二量体)も真空側に変位することになる。

以上のように推測したときのSTM像の輝点をFig. 5(a)の矢印に沿った部分のみを模式的に灰色丸で示した。Fig. 5(a)に示した矢印部分での断面図がFig. 5(b)であり、断面図には輝点对應するダングリングボンドが模式的に示されている。それらの高さが、Fig. 3(b)のラインプロファイルに対応する。ひずみによる付加原子

の変位は小さな 3×3 DAS アイランドの他の部分でも観察され、また 5×5 DAS アイランドにおいても観察されている¹³⁾。

提案した原子構造モデルを用いると、アイランドの崩壊過程を以下のように明快に説明できる。Fig. 2(c)と(d)の一部崩壊前後に注目する。崩壊前は円形の輝点であった箇所が(Fig. 2(c)の付加原子A, B), 付加原子Cの部分の崩壊後、それぞれが2重輝点(付加原子はA', B'である)として観察されている。Fig. 5(a)は一部崩壊前のアイランドに対応しており、崩壊後、Fig. 5(a)中の三角形で囲んだ部分(Fig. 2(c)の付加原子Cに相当)が消失した。その結果、Cと隣り合う2つの 3×3 DAS 半単位格子は、崩壊前は2辺の二量体が隣の 3×3 DAS 半単位格子とそれぞれ結合していたが、崩壊後は1つの二量体のみとの結合になり、2重輝点が生ずることになる。

3.2 ステップ

Si(111)表面に形成したステップのSTM像をFig. 6

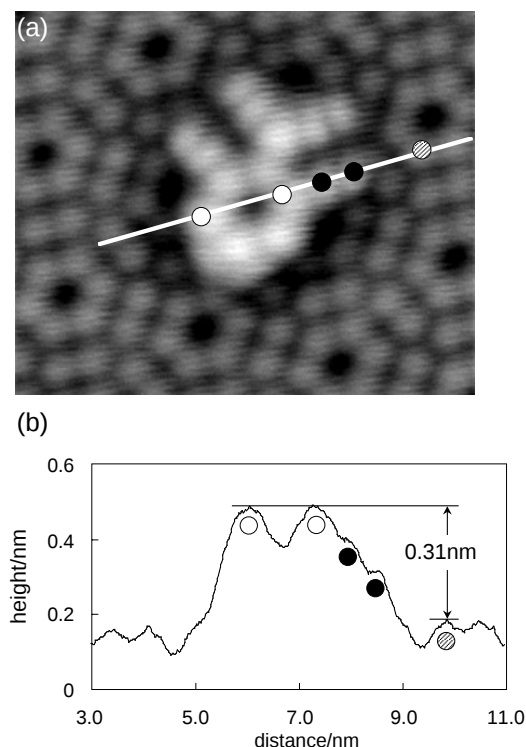


Fig. 3 (a) A reproduced STM image from Fig. 2 (c). Circles (white, black and hatched) distinguish in-equivalent protrusions. (b) A line profile along the white line in (a).

に示す。像の下方側が上段のテラスであり、ステップ1はステップ2よりも上段のステップである。ステップ1は今までも報告されてきた形状のステップで、 7×7 DAS 構造で終端している¹⁴⁾。一方、ステップ2の終端部には、2重輝点がいくつも観察されている(1つを円で囲んだ)。この2重輝点はアイランド終端部の2重輝点とよく似ている。

Fig. 6で囲んだ四角形部分を拡大してFig. 7(a)に示した。アイランドと同様にラインプロファイルを図. 7(b)に示した。白丸と斜線入りの丸に対応する輝点の高低差は0.31 nmであり、原子ステップであることを示している。Fig. 7(b)のラインプロファイルはFig. 3(b)のそれと大体一致している。したがって、ステップ終端部に観察された2重輝点部分は、アイランド終端部と同様に、緩和した 3×3 DAS 半単位格子であると考えられる。ここで原子構造モデルを図. 8に示す。丸で囲んだ部分が2重輝点部である。この 3×3 DAS 半単位格子はアイランドの時と同じく、1辺の二量体のみが隣と結合している。網掛した部分が上段のテラス、白地部分が下

段のテラスである。

3×3 DAS 半単位格子はなぜ原子ステップ終端部に形成したのだろうか。それについて議論する前に、 $S\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 7×7 表面の再構成構造の形成過程について述べる。 $Si(111)$ 表面は860 °C以上では“ 1×1 ”構造になることが知られている。860 °C以下では 7×7 DAS 構造に再構成する。表面を構成する原子数は 7×7 DAS 構造よりも“ 1×1 ”構造の方が多いため、“ 1×1 ”構造から 7×7 DAS 構造へ再構成する際、余剰原子が発生する¹⁵⁾。試料を860 °Cから室温まで徐冷した場合、余剰原子は表面を拡散してステップ終端部に取り込まれ、そこに 7×7 DAS 構造が形成される。一方、試料を860 °Cから室温まで急冷した場合は、ステップに到着するSi原子の数が少なく、ステップ成長の初期を観察できる可能性がある。

このような事実をもとに、なぜ 3×3 DAS 半単位格子がステップ終端部に形成したかを考察する。 7×7 DAS 構造が形成することにより余ったSi原子が、ステップに到着して吸着する際、まず 3×3 DAS 半単位格子のような小さな準安定構造を形成するのではないだろうか。この 3×3 DAS 半単位格子は9個のSi原子から成り立っており(隣の半単位格子と結合しているダイマーを含まない)、ダングリングボンドの数が5個と比較的少ない。 3×3 DAS 半単位格子がビルディング・ブロックとなり、Si原子のステップ端への到着に伴って、次々にビルディング・ブロックが形成されると思われる。Fig. 8で、上段の太い破線で示した部分が成長前のステップ終端部である。Fig. 6のステップ2の終端部には多くの 3×3 DAS 半単位格子が観察される。その後、ステップに到達するSi原子数が増加することにより、最終的には安定な 7×7 DAS 半単位格子になると考えられる。以上のように、ステップ成長の初期過程に関する重要な示唆を得た。

4. ま と め

$S\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 7×7 表面にSiを蒸着して形成したアイランド(3×3 DAS 構造)をSTMで観察した。これまでに報告されていない長丸型の2重輝点がアイランド終端部に観察された。この2重輝点は、1辺のみが隣と結合している 3×3 DAS 半単位格子の場合に観察されることを結論した。2辺が隣と結合していないことにより、大きなひずみが生じ、付加原子と二量体とが2重輝点として観察されるのではないかと提案した。この2重輝点の解釈により、アイランドの一部崩壊前後のSTM像の変化を説明することができた。また、急冷した $S\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 7×7 DAS 表面のステップ終端部にも、アイランドと同様な2重輝点を持つ 3×3 DAS 半単位格子が形成しているのを見出

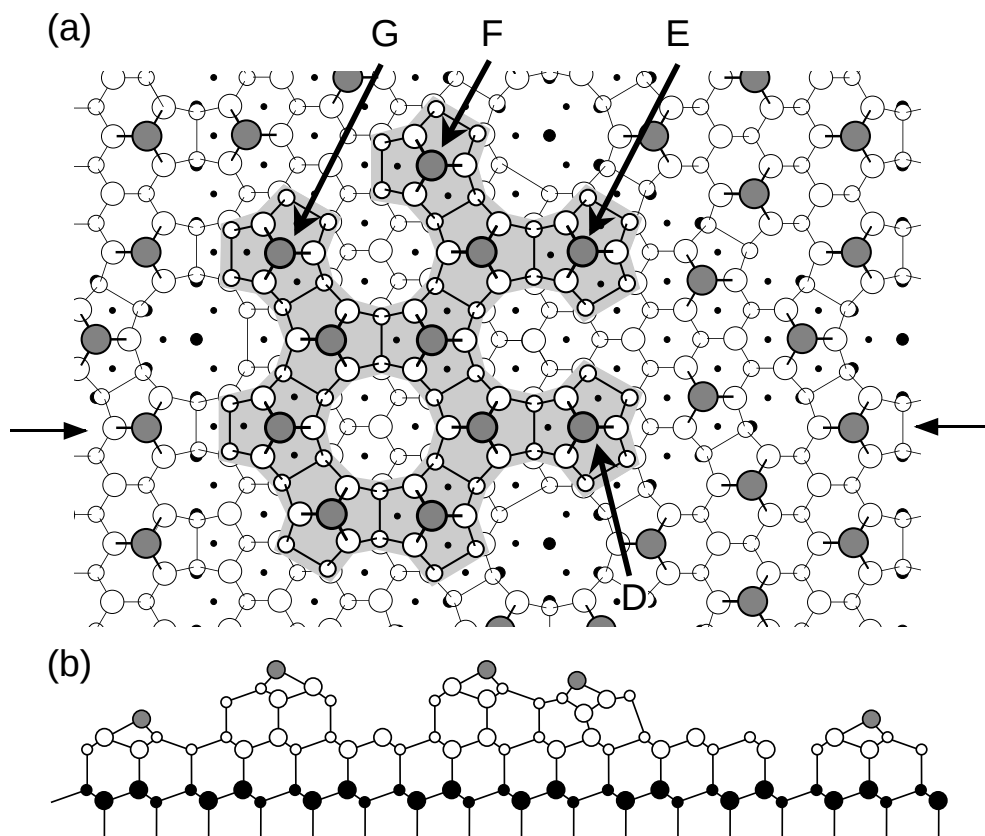


Fig. 4 (a) Top and (b) cross sectional (along arrows in (a)) views of atomic structure model of the Si island shown in Fig. 3 (a). Circles represent Si atoms. The island is shaded. “D”-“G” indicate adatoms, which appear elliptic. See text in detail.

した。

謝 辞

日本電子(株)の佐藤智重氏, 岩槻正志氏には JSPM-4500 XT を使用する機会を与えてくださり, 感謝いたします。

文 献

- 1) K. Takayanagi, Y. Tanishiro, M. Takahashi and S. Takahashi: J. Vac. Sci. Technol. B **4**, 1079 (1985).
- 2) K. Takayanagi, Y. Tanishiro, S. Takahashi and M. Takahashi: Surf. Sci. **164**, 367 (1985).
- 3) R.J. Hamers, R.M. Tromp and J.E. Demuth: Phys. Rev. Lett. **56**, 1972 (1986).
- 4) A. Ichimiya, T. Hashizume, K. Ishiyama, K. Motai and T. Sakurai: Ultramicroscopy **42**, 910 (1992).
- 5) T. Hasegawa, M. Kohno, S. Hosaka and S. Hosoki: Phys. Rev. B **48**, 1943 (1993).
- 6) W. Shimada and H. Tochiara: Surf. Sci. **311**, 107 (1994).
- 7) W. Shimada, H. Tochiara, T. Sato and M. Iwatsuki: Surf. Sci. **423**, L 291 (1999).
- 8) W. Shimada, H. Tochiara, T. Sato and M. Iwatsuki: Ultramicroscopy **82**, 103 (2000).
- 9) T. Sato, S. Kitamura and M. Iwatsuki: Surf. Sci. **445**, 130 (2000).
- 10) T. Hoshino, T. Ishimaru, H. Kawada and I. Ohdomari: Jpn. J. Appl. Phys. **38**, 1858 (1999).
- 11) A. Ichimiya, Y. Tanaka and K. Hayashi: Surf. Sci. **386**, 182 (1997).
- 12) Y. Shigeta: Surf. Rev. Lett. **5**, 865 (1998).
- 13) D.W. McComb, R.A. Wolkow, D.J. Moffatt and P.A. Hackett: Surf. Sci. **340**, L 955 (1995).
- 14) H. Tochiara, W. Shimada, M. Itoh, H. Tanaka, M. Udagawa and I. Sumita: Phys. Rev. B **45**, 11332 (1992).
- 15) Y.-N. Yang and E. Williams: Phys. Rev. Lett. **72**, 1862 (1994).

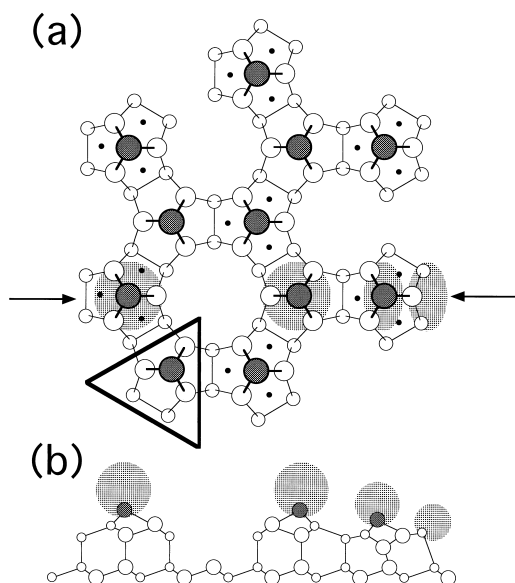


Fig. 5 (a) Top and (b) cross sectional (along arrows in (a)) views of the Si island shown in Fig. 3 (a). The substrate surface is not shown. Shaded circles correspond to protrusions observed in Fig. 3 (a) along the white line. For triangle, see text.

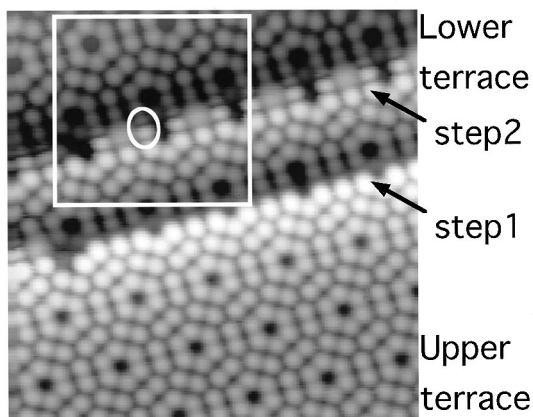


Fig. 6 A STM image of atomic steps on the quenched Si (111) 7×7 surface observed at room temperature. Top side of the image corresponds to lower terrace. See text for the white circle.

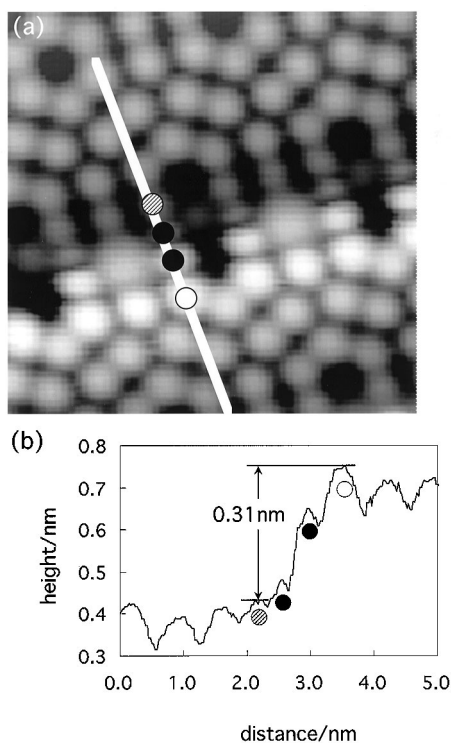


Fig. 7 (a) An enlarged STM image of the outlined square in Fig. 6. Circles (white, black and hatched) distinguish in-equivalent protrusions. (b) A line profile along the white line in (a).

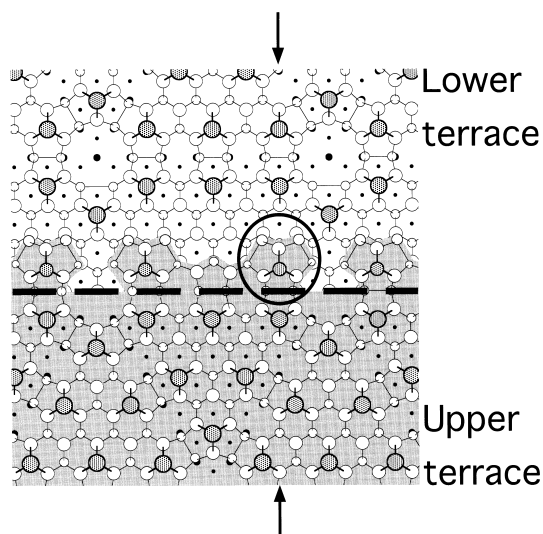


Fig. 8 Atomic structure model of the step observed in Fig. 7 (a). The upper terrace is shaded. The circle corresponds to that in Fig. 6. The thick broken line indicates the position of the step edge before the formation of the 3×3 DAS half unit-cells.