Si(111)表面の (7×7) ドメイン形状のステップ方位依存性

相澤 則行*・本間 芳和**

(受理1996年9月30日, 掲載決定1997年1月11日)

The Step Direction Dependency of Si(111) (7×7) Domain Shapes

Noriyuki AIZAWA* and Yoshikazu HOMMA**

*(Tokyo Gakugei University, 4-1-1 Nukui Kitamati, Koganei-shi, Tokyo)

**(NTT Science and Core Technology Laboratory Group, 3-9-11 Midori-cho, Musasino-shi, Tokyo)

(Received September 30, 1996, Accepted January 11, 1997)

1. 始めに

超高真空中の加熱でSi(111)表面を清浄にし, 徐冷すると表面が約1100 Kで相転移を起こし, 主にステップ上端からテラス内部に向かって(7×7)ドメインが成長する¹⁻³⁾. このとき位相境界(位相の一致しない(7×7)ドメイン間の境界)が発生し, 一定の時間の後には, 特定の方位をとることが観察される⁴⁾. この初期相境界の方位を決めるのは, ステップからテラス内に成長する(7×7)初期ドメインの形と大きさ, およびステップ方位によって決まるドメイン成長形態等である. この点を調べるために典型的な方位をとるステップからのドメインの発生と成長形態の観察を超高真空走査電子顕微鏡(UHV-SEM)を用いて行い, これらのステップから成長する(7×7)ドメインの形状が, 成長初期にはステップと, <112>方向に垂直な直線相境界((1×1)相と(7×7)相の境界)とで囲まれる形を取ることを明らかにした. また基板温度を相転移温度から徐々に低下させるに従い(7×7)ドメインはテラス内部に向かって成長するが, ステップの方位とドメインの形状との関係で, ドメインの広がり方に差が認められた.

2. 実験

(111)面から[112], [112], [110]方向に1°オフしたシリコンウェハから, おおの4×15×0.8 mm³の大きさをもつ試料を切り取った. 試料をH₂SO₄:H₂O₂(4:1)溶液を用いて酸化した後, UHV-SEMに導入し直流通電加熱により約1500 Kで清浄表面を得た. 温度は赤外線高温計で測定し, 校正は相転移温度を1100 Kとして行った. 表面相転移の観察はUHV-SEM中で, その場で行った. 真空度は加熱, 観察時とも1×10⁻⁷ Paであった. (111)から1°オフした微傾斜表面を持つ試料を1500 K近傍の温度でステップダウン方向に通電加熱を行うと, 表面がステップバンチングを起こし3~5ミクロン幅の(111)面のテラスができる⁵⁾. これを利用し作ったテラスのなかにさらにデバンチングを行い, 1モノレイヤー高さ(0.31 nm)で, オフ方向に垂直なステップを作った. 相転移温度より数度上の温度からゆっくりと基板の温度を下げていくと, ステップ上端から(7×7)ドメインが成長する. 前に報告したように(7×7)ドメインはSEM像では(1×1)より明るく見える⁶⁾.

3. 結果

Fig. 1の(a)は[112]方向にオフした表面において, ステップ上端から(111)テラスに成長した典型的な(7×7)ドメインを示している. ステップは[112]方向に下がり, かつステップ縁はこれに垂直である([112]ステップ).

* 東京学芸大学 (〒187 東京都小金井市貫井北町 4-1-1)

** NTT 基礎技術総合研究所 (〒180 東京都武蔵野市緑町 3-9-11)

Fig. 1 SEM images of (7×7) domains nucleated from $[11\bar{2}]$ steps (a, a'), $[\bar{1}\bar{1}2]$ steps (b, b'), and $[\bar{1}10]$ steps (c, c'). Steps are down from right to left of the images. Scale bars indicate $0.5 \mu\text{m}$.

(7×7) ドメインは $[11\bar{2}]$ ステップの縁に並んで形成される。ドメインの形はほぼ正三角形であり、頂点の方向はみな $\langle \bar{1}\bar{1}2 \rangle$ である。さらに $1 \sim 2 \text{ K}$ 基板温度を低くした状態を示すのが(a')である。ステップに形成された (7×7) の三角形ドメインがテラス内部に成長し、次のステップに到達している。多くの場合初期に形成された三角形ドメインの頂上で、新しい三角形ドメインが成長している。これらのドメインがテラスを覆った時、 7×7 構造の位相のずれにより位相境界が形成される。Fig. 1(b)はオフ方位が $[\bar{1}\bar{1}2]$ で(a)と逆にオフした表面で、 $[\bar{1}\bar{1}2]$ ステップ上端から成長したドメインを示している。ドメインの形は正三角形ではなく、ステップに平行な帯状となる。(b')は基板の温度をさらに $1 \sim 2 \text{ K}$ 下げた時のドメインを示している。帯状のドメイン領域がテラス内部に帯状のまま成長している。Fig. 1(a)と(b)はちょうどオフ方向が逆の表面であるが、これに垂直な $[\bar{1}10]$ 方向にオフした場合をFig. 1(c)に示す。(c)はドメイン成長初期を示している。観察されたドメインの形はほぼ正三角形を頂点から半分にしたような形状である。(c')は基板温度をさらに $1 \sim 2 \text{ K}$ 低くしたときの状態を示す。ドメインはステップにほぼ垂直な相境界から

はほとんど成長せず、ステップから斜めに出ている相境界での成長が主であるように観察される。基板温度の低下と共に、ドメインが成長し、三角形ドメインの先端が隣のステップに到達した後、ドメインは残りのテラスを覆うように成長する。Fig. 1(a), (b)に示した $[11\bar{2}]$, $[\bar{1}\bar{1}2]$ ステップから成長するドメイン形状の違いと二次核形成についてはBauer 達¹⁾のLEEM観察においても報告されている(但しステップ方位を取り違えている)。しかしこれに垂直な $[\bar{1}10]$ ステップについての報告は無い。

4. 考 察

実験結果のドメインパターンとステップの関係を模式的にFig. 2(a)に示した。Si(111)面の対称性から他のステップに形成されると思われる形も記した。濃く描かれたドメインが今回実験したステップ方位である。これから明らかに、ステップから初期に形成される三角形ドメインの辺は $\langle 11\bar{2} \rangle$ 方向と直交する直線相境界である。またどの方向を向いたステップから成長しても頂点の方向は $\langle \bar{1}\bar{1}2 \rangle$ をとる。この結果は、Fig. 2(b)のように (7×7) 三角形ドメインがDASモデル⁷⁾の積層不整を持つハーフユニット(F)で囲まれているとすれば説明される⁸⁾。Fig. 1(b)のドメインは頂点が $\langle \bar{1}\bar{1}2 \rangle$ 方位を向いている三角形ドメインの先端部をステップで切り取ったものがステップに沿って並んでいるとみることもでき、場合によってはそのような単独ドメインも観察される。テラス内にできる相境界はFが並んでいる(Fig. 2(c)), Fig. 1(c)の形のドメインがステップに形成されるのは、ステップがドメイン発生の核であり、Fig. 2(d)のように周囲をFで囲まれた小さな三角形ドメイン(太線)がステップに並び、テラス内の (1×1) 相と (7×7) 相の相境界が直線になり、境界エネルギーを最小にすることによると考えられる。STMの観察結果によればドメイン辺にFが形成され、そこにできたキンクを埋めるように新しい (7×7) ドメインが成長する⁹⁾。このようにキンクを解消し、ドメイン辺を直線にすることで、相境界のエネルギーを最小にし、三角形ドメインを維持していると考えられる。従って、いろいろな方位のステップから形成されるドメインは、ミクロな (7×7) ハーフユニット(F)の形を反映し、大きく成長しても他のドメインと相互作用しなければ、正三角形やその一部の形で観察される。また前に述べたように、これら初期ドメインがさらに成長する場合の広がり方はステップの方位により特徴的な違いがある。Fig. 1(a), (c)の写真では、ステップに沿った各々のドメイン辺の長さが成長初期に決まり、ドメインの先端が隣のステップ端に到達するまで

Fig. 2 Schematic illustrations of (7×7) domain shapes. (a) Macroscopic domain shapes for typical crystallographic orientations. Darker domains are those observed in this study. Domain shapes of the other directions are presented taking into consideration of the symmetry of the (111) surface. Steps are up counter-clockwise. (b, c, and d) Microscopic structure of (7×7) domains formed at the $\langle 11\bar{2} \rangle$, $\langle \bar{1}\bar{1}2 \rangle$, and $\langle \bar{1}10 \rangle$ steps, respectively. F and U denote the faulted and unfaulted halves of the (7×7) DAS structure, respectively.

変化していない。これはドメインの位相のずれが解消しにくいことによると思われる。Fig. 1(a)の $\langle 11\bar{2} \rangle$ ステップからの成長は、(a')に見られるように三角形の頂点からさらに三角形のドメインが成長し、不連続成長の傾向が表れている。(a')は三角形ドメインが形成されてからさらに1~2 K低い温度で保持し観察されたものである。温度が一定であればドメインの形は数分間は安定である。ステップから成長した個々のドメインはお互いに位相が異なっていることが多く、ステップに近いところ

はドメインがぶつかり位相境界ができ、エネルギー的に不安定である。STMの観察によれば、一定温度で、位相の一致しない位相境界は揺らいでおり、 (7×7) ユニットが生成消滅していることが報告されている¹⁰⁾。基板温度がゆっくり下がるにつれ、各々のドメインはステップから次第にテラス内に成長する。ドメインはFを周囲に形成しながら成長するが、相境界のエネルギーを最小にするために直線的になろうとする。ステップに対するFの配置を反映して、ドメインはステップ上の位相境界間を一边とする正三角形の形を維持すると考えられる。二次核が三角形ドメインの先端に形成されるのは先端に大きな歪があるためであろう¹⁾。基板温度をさらに低くすれば三角形ドメインに挟まれた領域も (7×7) 構造に相転移し、境界のみが残ることが観察される。Fig. 1(b)の成長は帯状のままの成長である。このときのドメイン境界ははっきりしないが、各々のドメインのステップに沿ったサイズは大きい。この成長の特徴は、ドメイン辺が直線状で、ステップに平行な相境界が連続的に成長を続けることである。Fig. 1(c)の成長は主にステップに斜めの相境界で進み連続的である。(b)(c)に共通することはステップに正三角形ドメインの辺が載っていないことである。ステップと正三角形ドメインの配置の関係はFig. 2(c)と(d)である。そのためドメインのサイズはFig. 2(b)のようにステップ上のドメイン辺のサイズで制限されず、テラス内にドメインを広げて行くことが出来、連続的に成長するものと考えられる。

5. 結 論

今回我々が観察した様に、ステップ上端から成長する (7×7) 初期ドメインは、ステップの方位によって決まった形をとり、 $\langle 11\bar{2} \rangle$ 方向に垂直な相境界で囲まれる。これは (7×7) ドメインがステップから形成されるとき、ステップがドメイン形成開始の場所であり、ドメインはミクロな (7×7) ハーフユニットFの形とステップに対する方位を反映して成長していることを意味している。またこれら初期ドメインがさらに成長する場合、ドメインの広がり方はステップ方位によって大きく異なる。

謝辞

有益な議論を頂いた北海道大学触媒化学研究センター早川和延教授に感謝いたします。

【文 献】

- 1) E. Bauer, M. Mundshau, W. Swiech and W. Teliops: J. Vac. Sci. Technol. **A9** (1991) 1007.

- 2) N. Osakabe, Y. Tanishiro, K. Yagi and G. Honjo: Surf. Sci. **353** (1981) 109.
- 3) R. S. Becker, J. A. Golovchenko, E. G. McRae and B. S. Swartzentruber: Phy. Rev. Lett. **55** (1985) 2028.
- 4) N. Aizawa and Y. Homma: Surf. Sci. **340** (1995) 101.
- 5) Y. Homma, R. J. McClelland and H. Hibino: Jpn. J. Appl. Phys. **29** (1990) L2254.
- 6) Y. Homma, M. Suzuki and M. Tomita: Appl. Phys. Lett. **62** (1993) 3276.
- 7) K. Takayanagi, Y. Tanishiro, M. Takahashi and S. Takahashi: J. Vac. Sci. Technol. **A3** (1985) 1502.
- 8) M. Hoshino, Y. Shigeta, K. Ogawa and Y. Homma: Surf. Sci. **365** (1996) 29.
- 9) T. Hoshino, K. Kumamoto, K. Kokubun, T. Ishimaru and I. Ohdomari: Phys. Rev. **B51** (1995) 14594.
- 10) K. Miki, Y. Morita, H. Tokumoto, T. Sato, M. Iwatsuki, M. Suzuki and T. Fukuda: Ultramicroscopy **42-44** (1992) 851.