

結晶成長におけるヒステリシスの再現

Reproduction of hysteresis in crystal growth

*三浦 均¹*Hitoshi Miura¹

1.名古屋市立大学大学院システム自然科学研究科

1. Graduate School of Natural Sciences, Department of Information and Biological Sciences, Nagoya City University

ステップ・ダイナミクスは、結晶成長における本質的な物理過程のひとつである。結晶表面には原子スケールの高さを持つ段差（ステップ）が存在し、そこに原子や分子が取り込まれることによってステップが前進し、結晶が一層ずつ積み上げられていく（層成長モデル）。従って、結晶成長メカニズムを解明するには、ステップの供給メカニズムやステップ前進速度を決める物理を理解する必要がある。

ステップ・ダイナミクスは、不純物の存在によって大きく影響を受ける。成長ヒステリシスは、不純物の存在によって引き起こされる良く知られた現象のひとつである[e.g., 1]。例えば、溶液からの結晶成長の場合、一般的に結晶成長速度は溶液の過飽和度と正の相関がある。しかし、溶液に不純物が含まれている場合、過飽和度を徐々に減少させながら成長速度を測定した場合と、逆に増加させながら測定した場合とでは、ある過飽和度における成長速度の値が異なる場合がある。この履歴現象は、結晶表面に吸着した不純物によってステップ前進が阻害される効果と、ステップが頻繁に結晶表面を掃くことで不純物の吸着が抑制される効果の相互作用によって引き起こされると考えられてきた。成長ヒステリシスに関する従来の理論では、吸着不純物密度やステップ前進速度などの物理量を時間・空間的に平均化して扱っていた（平均場理論, [e.g., 2-4]）。しかし、実際にはこれらの量は結晶面上の場所によって異なり、かつ時間とともに変化するため、平均場理論が実際の系にそのまま適用できるかどうかは自明ではなかった。

本講演では、不純物脱離・吸着過程を考慮したステップ・ダイナミクスの数値計算によって、成長ヒステリシスを再現した成果[5]について報告する。我々は近年、ステップ・ダイナミクスをフェーズ・フィールド（PF）法に基づいて定量的に扱う手法を開発した [6,7]。これに加えて、不純物脱離・吸着過程をモンテカルロ法（MC）法で計算することにより、吸着不純物密度やステップ前進速度などの物理量の時間・空間的变化を模擬した。高過飽和度・吸着不純物なしの状態から計算を開始し、一定の率で過飽和度を低下させ、その後増加させるというサイクルを10回繰り返してステップ前進速度の変化を調べたところ、いずれのサイクルにおいても成長ヒステリシスが現れることを確認した。過飽和度減少時と増加時のステップ前進速度履歴をそれぞれ10サイクル分平均したところ、平均場理論の結果[3]とよく一致することが分かった。以上の結果は、数値計算によって成長ヒステリシスを再現した初めての成果である。本提案手法を応用することで、結晶成長における不純物効果の理解が飛躍的に発展することが期待できる。

参考文献：[1] R. W. Friddle et al. (2010), PNAS 107, 11. [2] Y. O. Punin and O. I. Artamonova (1989), Kristallografiya 34, 1262. [3] H. Miura and K. Tsukamoto (2013), Cryst. Growth Des. 13, 3588. [4] H. Miura and K. Tsukamoto (2013), Japan Geoscience Union Meeting 2013, abstract MIS31-P05. [5] H. Miura (2016), accepted for publication in Cryst. Growth Des. [6] H. Miura and R. Kobayashi (2015), Cryst. Growth Des. 15, 2165. [7] H. Miura (2015), Cryst. Growth Des. 15, 4142.

キーワード：結晶成長、ステップ・ダイナミクス、不純物、ヒステリシス

Keywords: Crystal growth, Step dynamics, Impurity, Hysteresis