研究会報告

21. Surface Relaxation を考慮した TSKモデルによる結晶の平衡形

東大・教養　山本隆夫，伊豆山健夫

絶対零度（T＝0）においては、結晶は、平面によって囲まれた形、すなわち、多面体を成している。　T＞0では、角にあたる部分がとれて丸みをおび、いくつかの平面を曲面がつないだ形を成す。　この時の平面部分を、facetとよぶ。そして、温度がさらに上がると、平面の部分は消えてしまう。[1]　我々は、結晶が平面と曲面とに囲まれているような温度領域に注目する。　今回、我々が問題としたのは、facetと曲面とのつながり状態である。

結晶の表面自由エネルギーの異方性のために、熱平衡状態の結晶にfacetが存在する。　表面自由エネルギーで考えたとき、facet edge をはさんでのfacetから曲面にうつる様子は、ある意味で相転移とみなせる。　そのため、facet edge ちかくの様子が、理論的にも実験的にも注目されている。[2)-9)]　大別して、二つのタイプが考えられる。　facetと曲面部分がなめらかにつながる場合（2次転移）と、"かど"をつくってつながる場合（1次転移）[6),7),9)]とである。

2次転移の場合、あるuniversalな形（Pokrovsky-Talapov または Gruber-Mullins type[2),6),10)]とよばれている。）が存在すると信じられている。

通常のTSK　(Terrace-Step-Kink) モデル[2),6)]では、以下に示すように1次転移にはならず2次転移をしめす。　しかし、このモデルでは、結晶表面の構造を、単に、結晶を切った切口と考えていた。　よく知られているように、結晶表面では、relaxation　とか reconstruction　などがおこり、結晶内部とはことなった対称性が生じる。　我々は、surface relaxation　を考慮にいれたTSKモデルでは、1次転移が起こる可能性があることを示す。

TSKモデルとは、あるfacet　ちかくの傾いた面は、facet　の面に step が生じたためにできたと考えたモデルである。　格子間隔を1とし、傾きpの面の1格子当たりの自由エネルギーを　f(p)　とする。

$$F(p) = \sqrt{1 + p^2}\ f(p) \tag{1}$$

で　F(p)　を定義する。　TSKモデルでは、p が小さい時、F(p) は、つぎのように展開できる。[11)]

$$F(p) = [\ \varepsilon - k_B T \ln [\ 1 + 2 \exp(-\beta\delta)\ ]]\ |p| + a|p|^3 \tag{2}$$

a は定数（ $a > 0$ ）、εは1格子当たりの step の生成エネルギー、δは kink の生成エネルギーである。 また $\beta = (k_B T)^{-1}$ 。(2) 式の中の $|p|^3$ の項は、step が重なることが出来ないためのエントロピーの減少を示す項である。

今考えている facet の近くでの形は、長さの単位を適当にとれば、

$$z(x) = \min_p [\ F(p) + xp\ ] \tag{3}$$

できまる。[1),3)] ただし、facet は x-y 平面内にあり、 step は y 軸にそって とぎれることなく走っているものとする。 z(x) は、 z-x 平面で切った結晶の形をしめす。 ここで[...]を最小にする $p = p_{min}$ は、その場所での傾きを示す。

(2)式を用いて $x > 0$ のときを考えると、

$$z(x) = \begin{cases} -b\,(x - x_c)^{3/2}, & x \geqq x_c, \\ 0, & x \leqq x_c, \end{cases} \tag{4}$$

となる。ここで、b は正の定数、x_c は facet edge の位置で、温度の関数である。あきらかにこれは、２次転移の場合であることがわかる。

(2)式において $|p|$ を domain-wall 密度と考えれば、 F(p) は吸着系のＣ－ＩＣ転移のランダウ自由エネルギーとおなじ表式であり、(4)式において x を温度 T と考えれば、3/2 という指数はＣ－ＩＣ系の自由エネルギーのsingularity を特徴ずける数である。 Ｃ－ＩＣ系について (4) 式のような singularity があることを最初に指摘したのは、 Pokrovskyと Talapov[8)] であったので、 Pokrovsky － Talapov 型とよぶ。 この指数が現れた理由は、(3)式において $|p|$の項の次ぎに$|p|^3$の項が現れたことにある。 すなわち、step または domain-wall が重なれないことに起因する。 ＴＳＫモデル以外の解けるモデルにおいても、同じ指数がえられていて、[4),5)] universal なものであると信じられている。 facet edge でなめらかにつながる場合は、このようにして説明できる。 実際にも、鉛の結晶においてそれらしい測定がなされている。[6)]

つぎに、ＴＳＫモデルに、 surface relaxation の効果をいれる。Ｔ＝０のときの表面の原子層と、第２層との間隔をｄとする。 この間隔が d(1 + Q) にかわった時を考えよう。 一般には、 step 生成エネルギーεは、Ｑ の関数にな

っていると考えられる。 Qがそれほど大きくない時、$\varepsilon=\varepsilon(Q)$ は次のように書けるであろう。

$$\varepsilon(Q) = \varepsilon_0 - \alpha Q \tag{5}$$

Qだけ平衡位置から表面が動いたのだから、弾性エネルギーが $1/2KQ^2$ だけ増加するはずである。ここで、K は弾性常数。 ゆえに、このときのランダウ自由エネルギー F(p,Q) は、次のようになる。[12]

$$F(p,Q) = [\ \varepsilon_0 - \alpha Q - k_B T \ln[\ 1 + 2\exp(-\beta\delta)]]\,|p| + a|p|^3 + 1/2KQ^2 \tag{6}$$

(2)式に相当する F(p) は、 $F(p) = \min_Q F(p,Q)$ でもとまる。 すなわち

$$F(p) = [\ \varepsilon_0 - k_B T \ln[\ 1 + 2\exp(-\beta\delta)]]\,|p| - \alpha^2/(2K)\,|p|^2 + a|p|^3 \tag{7}$$

(7)式を(3)式にいれてやると、 $x < x_0$ では、$p_{min} = 0$ であるが $x > x_0$ においては、$p_{min} = p_F > 0$ となることがわかる。 $x = x_0$ で傾きが不連続すなわち、1次転移である。

1) 結晶の熱平衡形のレビューとしては、
C.Rottman and M.Wortis, Phys. Rep. 103, 59 (1984)
2) E.E.Gruber and W.W.Mullins, J. Phys. Chem. Solids 28,875 (1967)
3) A.F.Andreev, Sov.Phys.-JETP 53,1063 (1982)
4) C.Jayaprakash, W.F.Saam, and S.Teitel, Phys. Rev. Lett. 50,2017 (1983)
5) C.Jayaprakash and W.F.Saam, Phys. Rev.B 30,3916 (1984)
6) C.Jayaprakash, C.Rottman, and W.F.Saam, Phys. Rev.B 30,6549 (1984)
7) J.Saenz and N.Garcia, Surface Sci. 155,94 (1985)
8) C.Rottman, M.Wortis, J.C.Heyraud and J.Metois, Pys. Rev. Lett. 52, 1009 (1984)

9) J.C.Heyraud and J.Metois, J. Crystal Growth 50,571 (1980) ;
Acta Met. 28,1789 (1980)
10) V.L.Pokrovsky and A.L.Talapov, Phys. Rev. Lett. 42,65 (1979)
11) T.Izuyama and T.Yamamoto, J.Phys.Soc.Jpn. 52,4034 (1983)
12) T.Izuyama and Y.Akutsu, J.Phys.Soc.Jpn. 51,730 (1982)

22. 結晶２次元核の成長形

東北大・金研　上 羽 牧 夫

物質と熱の拡散が充分速やかに進む場合，ファセット面上のステップの運動は，異方性をもつ易動度 $\eta(\varphi)$ と自由エネルギー線密度 $\beta(\varphi)$ で決まる：

$$V=\eta\left(F-\frac{\tilde{\beta}}{R}\right),\quad \left(\tilde{\beta}=\beta+\frac{d^2\beta}{d\varphi^2}\right).$$

V は法線速度，F は過飽和度に比例する駆動力，R はステップの曲率半径である。臨界核の形状は $F=\tilde{\beta}/R$ で与えられ，Wulff 作図法で求まる２次元結晶の平衡形である。この臨界核の大きさは $r_c\sim\beta/F$ 程度になる。臨界核が成長し $r\gg r_c$ となるとその形は $V=\eta F$ の形状不変解[1]に近づく。この形は $\tilde{\eta}/R=(Ft)^{-1}$ を満たし（$\tilde{\eta}=\eta+\eta''$）平衡法と類似の作図法で求まる。しかしこの漸近形が角を持つ場合には（図１），この近くの r_c 程度の領域

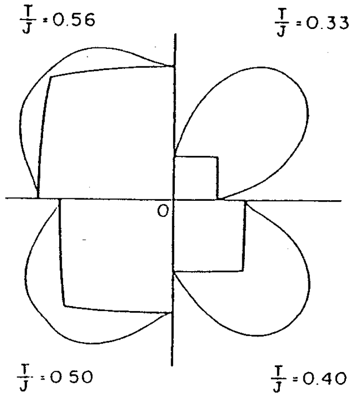

図１　形状不変解が角を持つ例。Kossel 模型の低温 v の近似計算。外側の曲線が $\eta(\varphi)$，内側の太線が漸近形。（1/4ずつ図示した。）