

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つた対称性が生じる。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。

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

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⁾

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

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、

$$z(x) = \min_p [F(p) + xp] \quad (3)$$

できる。^{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、

$$z(x) = \begin{cases} -b(x - x_0)^{3/2}, & x \geq x_0, \\ 0, & x \leq x_0, \end{cases} \quad (4)$$

となる。ここで、 b は正の定数、 x_0 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-I C 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-I C 系の自由エネルギーの singularity を特徴づける数である。C-I C 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 Talapov⁴⁾ 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。

$$\varepsilon(Q) = \varepsilon_0 - \alpha Q \quad (5)$$

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⁾

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

(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

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

(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, Phys. 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：

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

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

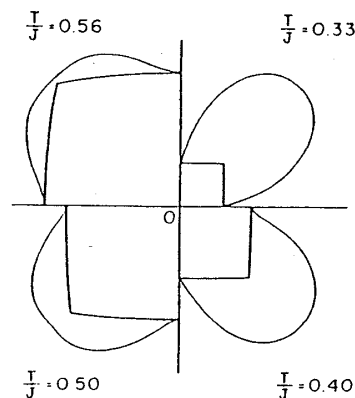


図 1 形状不変解が角を持つ例。Kossel 模型の低温 v の近似計算。外側の曲線が $\eta(\varphi)$ ，内側の太線が漸近形。(1/4 ずつ図示した。)