RHEED による GaAs 表面構造の研究

大 竹 晃 浩

独立行政法人 物質・材料研究機構ナノマテリアル研究所 ☎ 305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1

(2002 年 12 月 6 日受理)

RHEED Studies of GaAs Surface Structure

Akihiro OHTAKE

National Institute for Materials Science, Nanomaterial Laboratory
1-2-1 Sengen, Tsukuba, Ibaraki 305-0047

(Received December 6, 2002)

Rocking-curve analysis of reflection high-energy electron diffraction (RHEED) based on dynamical diffraction theory is a powerful method to study atomic structures of solid surfaces. Also, the grazing-angle geometry of the RHEED electron gun makes itself suitable for in-situ monitoring of molecular-beam epitaxy (MBE). This is of great advantage in evaluating the *real* surface structure of GaAs using RHEED rocking-curve analysis, because the experimental data can be analyzed without considering the effect of the adsorption and/or desorption of As, which might occur while the sample is transferred from an MBE chamber. This paper briefly reviews recent RHEED studies on the atomic structures of GaAs(001) surfaces. Results for the As-stabilized $c(4 \times 4)$ and Ga-stabilized $c(8 \times 2)$ surfaces, and the adsorption structure of Zn on the (2×4) surface are presented.

1. は じ め に

反射高速電子回折法 (reflection high-energy electron diffraction: RHEED) を使った GaAs 表面の研究と聞くと、分子線エピタキシー成長 (molecular beam epitaxy: MBE) 中に起こる RHEED 強度振動を連想される読者が多いことと思う。実際、試料表面上に広い空間が確保できるという特徴を持つ RHEED は、MBE 成長過程の評価に最適な手法といえる。一方、表面構造解析手法としての RHEED (ロッキングカーブ解析) の認知度は決して高くはなく、低速電子回折法 (low-energy electron diffraction: LEED) や X 線回折法 (x-ray diffraction: XRD) などの後塵を拝しているとの印象は拭いきれない。しかしながら、GaAs などの化合物半導体の表面構造を研究対象とした場合、MBE 成長室内で利用可能という RHEED の特徴がもたらす利点は計り知れない。

本稿では、著者が最近行った GaAs 表面研究の一部を紹介する。まず、GaAs 表面の研究に RHEED が適して

いる理由 (2 節) と実験装置 (3 節) について簡単に述べた後、具体例として GaAs (001)- $c(4 \times 4)$ と $c(8 \times 2)$ 表面構造および GaAs (001)- (2×4) 表面上の Zn の吸着構造を評価した結果について説明する (4 節)。

2. なぜ RHEED か?

GaAs 表面上では表面組成に依存して様々な再配列構造の現れることが知られている。例えば (001) 表面の構造は、表面の組成が As リッチから Ga リッチになるにつれて、 $c(4 \times 4) \rightarrow (2 \times 4) \rightarrow (2 \times 6) / (3 \times 6) \rightarrow c(8 \times 2)$ と変化する。これらの表面構造を MBE を用いて作製する場合、通常、As 分子線強度と基板温度によってその組成を制御する。これは As の蒸気圧が Ga のそれよりも桁違いに大きいことを利用したもので、基板温度 (As 分子線強度) の増加とともに表面は Ga(As) リッチとなる。ところが、こうして準備した表面を分析しようとする、やや面倒な問題に直面する。試料を分析室へ移送するために MBE 成長室から取り出す際に、基板温度が十分に高い状態で As 分子線の供給を中止すると表面から As が脱離してしまう。逆に、As 雰囲気下で基板温度

を必要以上に下げた場合には余剰な As の吸着が起こり得る。つまり、MBE 成長室内で準備した表面が分析時に保存されているかを保証する必要がある。一方、RHEED を解析手法として用いた場合、分析にあたって試料を成長室から取り出す必要がなく、MBE で用意した表面構造をそのまま評価できる。著者が GaAs 表面の研究の主たる解析手法として RHEED を選択した最大の理由もこの点にある。

3. 実験装置および解析手法

3.1 実験装置

Fig. 1 に本研究で使用した装置（アトムテクノロジー研究体にて開発）の模式図を示す。本装置は二室の MBE 成長室、走査トンネル顕微鏡（scanning tunneling microscopy: STM）、X 線光電子分光（x-ray photoelectron spectroscopy: XPS）、原子間力顕微鏡の各装置から構成される。MBE 成長室 (II) にはロッピングカーブ測定用の RHEED 電子銃が装備されており、MBE 環境下での GaAs 表面の構造解析が可能となっている。また、RHEED と相補的な情報を与える全反射角 X 線分光装置（total-reflection-angle x-ray spectroscopy: TRAXS）と反射率差分光法装置：reflectance difference spectroscopy: RDS）も装備している。

3.2 実験および解析手法

本研究では市販の“epi-ready”タイプ GaAs (001) ウエハを用いた。まず MBE 成長室 (I) において 1×10^{-6}

Torr の As_4 分子線照射下で 580°C まで試料を加熱して表面の酸化物を除去した後、基板温度 550°C 、成長速度 0.05 ML/s の速度で数百 Å の膜厚のバッファ層を成長させる。バッファ層成長後、 As_4 分子線照射下で数時間アニールすることにより、原子レベルで平坦な GaAs (001)-(2×4) 表面が得られる。次に、サンプルを MBE 成長室 (II) へ搬送し、ここで As_4 分子線強度と基板温度を制御することによって望みの表面構造を作製する。

RHEED ロッキングカーブの測定には Staib 社製の電子銃 (EK-35-R) を用いた。この電子銃は二組の偏向コイルを有しており、コイルに流す電流値を制御することにより試料表面上の電子線照射位置を変えることなく電子線の視斜角を変化させられる。 $0-7^\circ$ の範囲で視斜角を変化でき、その測定時間は最短で 10 秒以下である。

RHEED 強度の計算は一宮の multislice 法¹⁾を用いた。RHEED 計算に用いた諸パラメータの詳細は文献²⁻⁵⁾を参照されたい。

4. GaAs 表面の構造解析例

4.1 GaAs (001)-c(4×4) 表面²⁾

GaAs (001) 表面上に出現する多くの表面構造の中で、最も精力的に研究がなされてきた (2×4) 表面に対しては、 $\beta 2(2 \times 4)$ モデル⁶⁾が 1990 年代半ばには確定構造として認知されていた⁷⁾。一方、最も As リッチな条件下で出現する c(4×4) 表面に対しても、3 つの As-As ダイマーから構成される構造モデル (Fig. 2 (a)) が 10 年以

Fig. 1 Dual-chamber MBE system.

Fig. 2 Surface reconstruction models for GaAs(001)-c(4×4).

Fig. 3 RHEED rocking curve measured from the GaAs(001) surfaces at [110] incidence.

上にもわたって受け入れられていた⁸⁻¹³⁾。しかしながら、過去の研究結果を吟味してみると、いくつかの矛盾点が指摘できる。例えば、GaAs(001)-c(4×4) 構造に対する XRD 解析からは、単位ユニットあたり 3 つの As-As ダイマーを持つ構造と 2 つの As-As ダイマーを持つ構造 (Fig. 2 (b)) の混在が指摘されているが¹⁰⁾、後者の存在は STM で確認されていない^{8,9)}。さらに、LEED 解析によって決定された原子座標¹²⁾は、第一原理計算から

Fig. 4 Filled state STM images obtained from the GaAs(001)-c(4×4) surface with a tunneling current of 0.3 nA and a sample voltage of -3 V. Image dimensions are 361×551 Å² (a) and 80×52 Å² (b). The solid lines in (b) show the c(4×4) lattice mesh.

得られた値¹¹⁾と大きく異なる。

過去の報告によれば、c(4×4) 表面の組成は基板温度と As 分子線強度によって大きく変動するといわれている^{9,13)}。このことは、c(4×4) 構造が複数の相から構成される可能性はもとより、解析に用いた c(4×4) 表面から As が脱離していた可能性をも示唆している。そこで、詳細な構造解析に先立って、まず、MBE 環境下での RHEED ロッキングカーブ測定によって、c(4×4) に複数の相が存在するの可否かを検証することとした。

GaAs(001)-c(4×4) 表面は As₄ 分子線 (2.5×10⁻⁷ Torr) 照射下で (2×4) 表面を徐冷することによって作製した。その過程で測定した RHEED ロッキングカーブを Fig. 3 に示す。約 550°C から冷却を開始すると、約 450°C で c(4×4) 構造へと変化し、同時にロッキングカーブの形状も大きく変化する。その後、約 200°C まで RHEED パターンおよびロッキングカーブ形状に変化はみられないことから、200–450°C の温度範囲で表面の構造が変化しないことがわかる。次に As₄ 分子線の照射を止め、この表面を 250°C、5×10⁻¹¹ Torr の条件下で数時間保持した

Fig. 5 RHEED rocking curves (solid curves) measured from the GaAs (001)-c(4×4) surface at 250 °C. The dashed and dotted curves are calculated from the Ga-As dimer and As-As dimer models, respectively.

が、RHEED パターンおよびロッキングカーブ形状に変化は見られなかった。したがって、この時点で試料を成長室から取り出せば、As の脱離も吸着も起こさずに c(4×4) 表面を保存できる。以上の手順で作製した c(4×4) 表面の STM 像 (占有状態像) を Fig. 4 (a) と (b) に示す。広いテラス上に長方形の輝点が c(4×4) 周期で並んでいる様子が見てとれる。また、複数の相の存在は確認できない。ここで、Fig. 4 (b) における拡大像を注意深く観察すると、輝点の位置が [110] および [1̄10] 方向にずれていることがわかる。Fig. 4 の STM 像は占有状態像であるため、As 原子が輝点として現れているはずである。したがって、Fig. 2 (a) の As-As ダイマーを Ga-As ダイマーに置き換えたモデル (Fig. 2 (c)) を仮定すれば、Fig. 4 (b) の STM 像に一応の説明がつくことになる。そこで、このモデルの妥当性を検証するために RHEED 解析を行うこととした。

Fig. 5 は c(4×4) 表面に対するロッキングカーブの測定結果 (実線) と、最適化後の Ga-As ダイマーモデル (Fig. 6) から計算された結果 (破線) を示す。また図中の点線は As-As ダイマーモデルに対する計算結果を示

Fig. 6 Optimized structure model of the GaAs(001)-c(4×4) surface.

す。Ga-As ダイマーモデルからの計算結果は実験データの特徴をほぼ再現しているのに対し (R 因子=5%), As-As ダイマーモデルの計算結果は実験結果と大きく異なっている (R 因子>30%)。また、Table 1 および Fig. 6 から明らかなように、最表面の Ga はバルク側へ大きく変位しており、これがこの構造の安定化の鍵を握っている²⁾。また、RHEED 解析と第一原理計算から求めた原

Table 1 Atomic displacements from bulk positions in the optimized structure model for the GaAs(001)-c(4×4) surface (in Å).

	RHEED analysis			First-principles calculations		
	x	y	z	x	y	z
As1	+0.28±0.07	-0.55±0.15	-0.15±0.07	+0.14	-0.53	-0.13
Ga1	-0.13±0.13	1.09±0.14	-0.85±0.05	-0.08	+1.09	-0.80
As2	- - - -	-0.48±0.28	-0.22±0.13	- - - -	-0.47	-0.17
Ga2	- - - -	+1.21±0.27	-0.81±0.11	- - - -	+1.15	-0.81
As3	-0.28±0.16	+0.29±0.14	+0.25±0.10	-0.23	+0.13	+0.21
As3'	+0.09±0.16	-0.19±0.15	+0.21±0.09	-0.02	-0.05	+0.18
As4	+0.01±0.15	-0.14±0.14	-0.01±0.07	-0.01	+0.01	-0.03
As4'	+0.18±0.10	-0.14±0.09	-0.20±0.05	+0.04	-0.06	-0.25

Fig. 7 Surface reconstruction models for GaAs(001)-c(8×2).

子座標を比較すると、Ga-As ダイマーモデルの場合にはほとんど同じ値が得られたが (Table 1), As-As ダイマーでは両者は全く異なる値をとる。以上より、当該表面の構造としては、新たに提唱した Ga-As ダイマーモデルが妥当であると結論できる。

4.2 GaAs(001)-c(8×2)表面³⁾

最も Ga リッチな条件下で現れる GaAs(001)-c(8×2) 表面は、基本的には (4×2) の単位胞から構成される。以前は、As 安定化 (2×4) 表面との類似性から、β 2(2×4) 構造における Ga と As を入れ替えたモデル (β 2(4×2) モデル; Fig. 7 (a))¹⁴⁾や、3つの Ga ダイマーから構成されるモデル (β (4×2) モデル; Fig. 7 (b))¹⁵⁾などが提唱されていたが、いずれのモデルも決定力に欠けていた。最近になって、表面から第三層目の Ga 原子がダイマーを形成する構造 (ζ モデル; Fig. 7 (d)) が第一原理計算の結果に基づいて提唱された¹⁶⁾。この構造モデルは、過去の LEED, STM, XRD の実験結果をよく説明する^{16, 17)}。一方、同時期に、直接法を用いた XRD 解析によって類似の構造モデル (Fig. 7 (e)) が提唱された¹⁸⁾。この両者は、再表面の Ga の被覆率の違いを除いて基本的に同じ構造を持つことから、これらが c(8×2) の基本構造である可能性が高い。

ところで、(2×6)/(3×6) や c(8×2) 構造などの Ga 安定化表面は、通常、As 安定化表面である c(4×4) や (2×4) 表面を超高真空中で加熱することにより得られる。本研究でもこれに倣い、(2×4) 表面を加熱することにより c(8×2) 表面を作製した。(2×4) 表面は温度上昇に伴って約 450℃ で (2×6)/(3×6) 表面へと変化し、約 600℃ 以上で c(8×2) 構造が出現する。ところが、一旦形成された c(8×2) 表面を 600℃ 以下に冷却すると、表面は可逆的に (2×6)/(3×6) へと変化する。このことは、過去に行われた室温での構造評価 (STM, XRD 等) に用いられた表面そのものの信頼性に疑問を抱かせると同時に、高温での構造解析の必要性を示唆する。

Fig. 8 に 610℃ で測定したロッキングカーブを示す。この実験結果に対して、まず、ζ モデル (Fig. 7 (d)) に対して解析を行ったところ (Fig. 8 点線)、構造最適化後の R 因子は 14.4% となった。次に、Kumpf らの提唱したモデル (Fig. 7 (e)) に基づいて、最適化の際に最表面の Ga ダイマー (Ga 2) と Ga アドアトム (Ga 1) のサイト占有率を変化させることによって R 因子は 8.9% まで低下した (Fig. 8 破線)。最終的な構造最適化の結果を Table 2 および Fig. 9 に示す。

Fig. 8 RHEED rocking curves (solid curves) measured from the GaAs(001)- $c(8 \times 2)$ surface at 610°C . The dashed and dotted curves are calculated from the optimized structures based on the models proposed by Kumpf et al.¹⁸⁾ and Lee et al.¹⁶⁾, respectively.

Table 2 Atomic coordinates of the optimized structure model for the GaAs(001)- $c(8 \times 2)$ surface. The atomic coordinates x and y are given as fraction of unit cells along the $[110]$ and $[1\bar{1}0]$, directions in Fig. 9. The z coordinates refers to the $[001]$ direction with magnitude equal to the bulk (001) spacing of $5.6538 \text{ \AA}$, the origin of which is at the fifth atomic layer.

	This study				Kumpf et al. (ref. 18)			
	x	y	z	θ	x	y	z	θ
Ga(1)	0.000	0.530 ± 0.150	0.755 ± 0.026	0.27 ± 0.09	0.000	0.500	0.827	0.19
As(1)	1.501 ± 0.020	0.457 ± 0.030	0.638 ± 0.016	• • •	1.460	0.489	0.639	• • •
Ga(2)	2.000	0.248 ± 0.105	0.456 ± 0.032	0.47 ± 0.13	2.000	0.293	0.475	0.63
Ga(3)	1.108 ± 0.040	0.000	0.554 ± 0.021	• • •	1.117	0.000	0.571	• • •
Ga(4)	1.125 ± 0.040	1.000	0.577 ± 0.030	• • •	1.130	1.000	0.579	• • •
As(2)	0.505 ± 0.045	0.000	0.528 ± 0.023	• • •	0.526	0.000	0.515	• • •
As(3)	0.593 ± 0.033	1.000	0.527 ± 0.021	• • •	0.539	1.000	0.509	• • •
Ga(5)	0.483 ± 0.030	0.463 ± 0.032	0.283 ± 0.012	• • •	0.516	0.470	0.256	• • •
Ga(6)	1.463 ± 0.040	0.623 ± 0.018	0.218 ± 0.017	• • •	1.474	0.670	0.212	• • •

とモデル (Fig. 7 (d)) は、いわゆる電子数評価モデル¹⁹⁾を満たしているのに対し、Fig. 7 (e) に示したモデルは Ga 2 サイトの占有率が 1 ではないため、これを満たさない。また、 ζ 表面上において Ga アド原子が安定に存在することも直感的には理解し難い。それにもか

かわらず、XRD および RHEED 解析が Fig. 7 (d) のモデルを支持する結果を導き出したのは大変興味深い。前述したように、 $c(8 \times 2)$ 構造は温度低下とともに $(2 \times 6)/(3 \times 6)$ 構造へと変化する。このことは、 $c(8 \times 2)$ 構造が必ずしも最安定構造ではない可能性を示唆してお

り、余剰および欠損 Ga 原子の存在と矛盾しないようにも思われる。しかしながら、高温でのみ $c(8 \times 2)$ 構造が安定に存在するメカニズムは未だ不明であり、局所構造の評価も含めて今後の研究が待たれる。

Fig. 9 Optimized structure model of the GaAs(001)- $c(8 \times 2)$ surface.

4.3 GaAs(001)表面上での Zn 原子吸着⁴⁾

代表的な II-VI 族半導体である ZnSe を GaAs(001) 上に成長させる際に、 (2×4) 表面上への Zn 分子線の照射から成長を開始させると、最も欠陥の少ない膜ができることが知られている²⁰⁾。そのメカニズムを知るためには、 (2×4) 表面上での Zn の吸着サイトおよび吸着量に関する知見が不可欠であり、これまでに STM や XPS などを用いた研究がなされてきた²¹⁻²³⁾。ところが、Zn 照射後の (2×4) 表面から測定した XPS スペクトル中には Zn の存在が確認されたものの^{21, 22)}、同じ条件で作製した STM 像中にはそれに相当するコントラストは観測されない^{22, 23)}。また、 (2×4) 表面上の Zn は非常に脱離しやすいため、成長温度 (200–300 °C) で Zn を照射した後のサンプル搬送中に Zn が脱離してしまう可能性がある。そこで、ZnSe 成長直前の Zn 吸着量を正確に見積もるために、 (2×4) 表面上への Zn 照射中に RHEED ロッキングカーブ測定を行った。

Fig. 10 (a) RHEED rocking curves (solid curves) measured from the GaAs(001)- (2×4) surface. The dashed curves are calculated for the optimized structure based on the $\beta 2(2 \times 4)$ model. (b) and (c) are same as in Fig. 10 (a), but for the surfaces exposed to the Zn beam at 250 °C and 200 °C, respectively.

Fig. 10 は Zn 照射前および Zn 照射中に測定した RHEED ロッキングカーブを示す。まず、Zn 照射前の (2×4) 表面に対して構造解析を行ったところ、 $\beta 2(2 \times 4)$ モデルに基づく計算結果が実験結果を最もよく再現できた (Fig. 10 (a) 点線)^{4, 5)}。Zn 照射中のロッキングカーブ (Fig. 10 (b) と (c)) に対しては以下に述べる方法で解析を行った。**Fig. 11** に示すように、 $\beta 2(2 \times 4)$ モデルは最表面の 2 つの As ダイマーと第三層目の As ダイマーから構成される⁶⁾。本解析においては、図中の A-D を Zn の吸着サイトと仮定し、その原子座標とサイト占有率をフィッティングパラメータとして構造最適化を行った。この際、基板側においては、Zn 原子の第一および第二近接原子の位置も最適化した。**Table 3** に示すように、250℃においては、 (2×4) 表面上に存在する Zn 原子のほとんどがサイト C と D、つまり Ga 欠損サイトへ吸着し、サイト A および B にはほとんど吸着しない。一方、200℃においては、C と D サイトはほぼ占有され、A と B にも吸着が起こっている。また、Zn 吸着にともなって、As-As ダイマー間の距離が広がる様子も確認された⁴⁾。これらの実験結果は、後に第一原理計算によっても確認されている²⁴⁾。なお、Table 3 中に示

した Zn 被覆量は TRAXS 測定から得られた値と概ね一致する⁴⁾。

ここで、過去の STM 像中に Zn 吸着の痕跡が見られなかった理由について考えてみる。本解析の結果は Zn が Ga 欠損サイトに優先的に吸着することを示している。このサイトは幾何学的には凹部であり、それが STM による Zn の検出を困難にしている一因と思われる。さらに、Zn は II 族元素であるため、そのダングリングボンドは空軌道となっていると考えるのが自然である。この考えに基づけば、占有状態 STM 像中で Zn が観測できないことは容易に理解できる。

5. お わ り に

本稿では、RHEED を用いた GaAs 表面の研究例として、RHEED ロッキングカーブ解析を中心とした最近の研究成果について紹介させていただいた。紙面の都合で割愛したが、他の面方位の表面や他の物質系 (InSb, InAs など) の表面構造決定に際しても RHEED ロッキングカーブ解析が成功した例は少なくない²⁵⁻²⁷⁾。特に、MBE 環境下のみで存在するような準安定相の解析ができるという点は、他の多くの手法にはない特徴といえよう。

RHEED と MBE との組み合わせという点では、本研究の延長線上に、“成長表面の構造解析”という目標がある。つまり、薄膜成長中の表面に対して構造解析を行うことにより、その動的過程を原子レベルで明らかにしようとするものであり、すでにいくつかの報告例がある²⁸⁻³⁰⁾。また、今回ご紹介した Zn/GaAs(001) 系吸着過程の評価も動的観察の一例として位置づけることもできよう。しかしながら、この分野はまだ未成熟であり、RHEED 強度振動の起源に対してさえ統一した見解がないのが現状である。測定方法だけでなく解析方法に関しても今後の発展が期待される。

謝 辞

本研究で使った RHEED 計算プログラムは東北大学金属材料研究所の花田 貴博士よりご提供いただきましたし

Fig. 11 Surface reconstruction model for GaAs(001)-(2×4). Adsorption sites of Zn are indicated by the letters A, B, C, and D.

Table 3 The atomic coordinates (x, y, and z) and the site occupancies (θ) of Zn atoms on the GaAs(001)-(2×4) surface.

Notations in Fig. 8	200℃				250℃			
	x	y	z	θ	x	y	z	θ
A	-0.69	2.25	0.56	0.60 (0.41-0.77)	-1.07	2.41	0.88	0.14 (0.02-0.24)
B	4.37	0.56	1.08	0.41 (0.35-0.46)	4.45	0.48	0.55	0.03 (0.00-0.12)
C	2.74	12.00	-1.63	1.00 (0.72-1.00)	2.94	12.00	-1.71	0.59 (0.40-0.82)
D	6.60	12.00	-1.41	0.99 (0.61-1.00)	6.22	12.00	-1.38	0.49 (0.18-0.79)

た。ここに感謝いたします。また、本研究は、アトムテクノロジー研究体および物質・材料研究機構にて行われたものです。関係各位のご理解とご協力に対し、この場を借りて御礼申し上げます。

文 献

- 1) A. Ichimiya: Jpn. J. Appl. Phys. Part 1 **22**, 176 (1983); **24**, 1365 (1985).
- 2) A. Ohtake, J. Nakamura, S. Tsukamoto, N. Koguchi and A. Natori: Phys. Rev. Lett. **89**, 206102 (2002).
- 3) A. Ohtake, S. Tsukamoto, M. Pristovsek, N. Koguchi and M. Ozeki: Phys. Rev. B **65**, 233311 (2002).
- 4) A. Ohtake, T. Komura, T. Hanada, S. Miwa, T. Yasuda, K. Arai and T. Yao: Phys. Rev. B **59**, 8032 (1999); A. Ohtake, T. Hanada, T. Yasuda and T. Yao: Appl. Phys. Lett. **74**, 2975 (1999).
- 5) A. Ohtake, M. Ozeki, T. Yasuda and T. Hanada: Phys. Rev. B **65**, 165315 (2002).
- 6) D.J. Chadi: J. Vac. Sci. Technol. A **5**, 834 (1987).
- 7) 例えば, T. Hashizume, Q.K. Xue, A. Ichimiya and T. Sakurai: Phys. Rev. B **51**, 4200 (1995).
- 8) D.K. Biegelsen, R.D. Bringans, J.E. Northrup and L.-E. Swarts: Phys. Rev. B **41**, 5701 (1990).
- 9) A.R. Avery, D.M. Holmes, J. Sudijono, T.S. Jones and B. A. Joyce: Surf. Sci. **323**, 91 (1995).
- 10) M. Sauvage-Simkin, R. Pinchaux, J. Massies, P. Calverie, N. Jedrecy, J. Bonnet and I.K. Robinson: Phys. Rev. Lett. **62**, 563 (1989).
- 11) A. Nagashima, M. Tazima, A. Nishimura, Y. Takagi and J. Yoshino: Surf. Sci. **493**, 227 (2001).
- 12) N. Moll, A. Kley, E. Pehlke and M. Scheffler: Phys. Rev. B **54**, 8844 (1996).
- 13) C. Sasaoka, Y. Kato and A. Usui: Surf. Sci. **265**, L 239 (1992).
- 14) Q. Xue, T. Hashizume, J.M. Zhou, T. Sakata, T. Ohno and T. Sakurai: Phys. Rev. Lett. **74**, 3177 (1995).
- 15) J. Cerdá, F.J. Palomares and F. Soria: Phys. Rev. Lett. **75**, 665 (1995).
- 16) S.H. Lee, W. Moritz and M. Sheffler: Phys. Rev. Lett. **85**, 3890 (2000).
- 17) D. Paget, Y. Garreau, M. Sauvage, P. Chiaradia, R. Pinchaux and W.G. Schmidt: Phys. Rev. B **64**, 161305 (2001).
- 18) C. Kumpf, L.D. Marks, D. Ellis, D. Smilgies, E. Landemark, M. Nielsen, R. Feidenhans'l, J. Zegenhagen, O. Bunk, J.H. Zeysing, Y. Su and R.L. Johnson: Phys. Rev. Lett. **86**, 3586 (2001); C. Kumpf, D. Smilgies, E. Landemark, M. Nielsen, R. Feidenhans'l, O. Bunk, J.H. Zeysing, Y. Su, R.L. Johnson, L. Cao, J. Zegenhagen, B. O. Fimland, L.D. Marks and D. Ellis: Phys. Rev. B **64**, 075307 (2001).
- 19) M.D. Pashley: Phys. Rev. B **40**, 10481 (1989).
- 20) L.H. Kuo, K. Kimura, T. Yasuda, S. Miwa, C.G. Jin, K. Tanaka and T. Yao: Appl. Phys. Lett. **68**, 2413 (1996).
- 21) S. Heun, J.J. Paggel, S. Rubini and A. Franciosi: J. Vac. Sci. Technol. B **14**, 2980 (1996).
- 22) S. Miwa, L.H. Kuo, K. Kimura, T. Yasuda, A. Ohtake, C. G. Jin and T. Yao: Appl. Phys. Lett. **73**, 939 (1998).
- 23) S. Ahsan, A. Kahn and M.D. Pashley: Appl. Phys. Lett. **71**, 2178 (1997).
- 24) R. Miotto, G.P. Srivastava and A.C. Ferraz: Appl. Phys. Lett. **76**, 3735 (2000); Phys. Rev. B **62**, 13623 (2000).
- 25) A. Ohtake, T. Komura, T. Hanada, S. Miwa, T. Yasuda, K. Arai and T. Yao: Phys. Rev. B **59**, 8032 (1999).
- 26) A. Ohtake, T. Hanada, T. Yasuda, K. Arai and T. Yao: Phys. Rev. B **60**, 8326 (1999).
- 27) A. Ohtake, J. Nakamura, T. Komura, T. Hanada, T. Yao, H. Kuramochi and M. Ozeki: Phys. Rev. B **64**, 045138 (2001).
- 28) H. Nakahara and A. Ichimiya: Surf. Sci. **241**, 124 (1991).
- 29) Y. Fukaya, Y. Shigeta and K. Maki: Phys. Rev. B **61**, 13000 (2000).
- 30) A. Ohtake, M. Ozeki and J. Nakamura: Phys. Rev. Lett. **84**, 4665 (2000).