斜入射・斜出射-蛍光 X 線分析法による 表面・薄膜分析

辻 幸一・佐藤成男・広川吉之助

東北大学金属材料研究所 ☎980 仙台市青葉区片平 2-1-1

(1994 年 8 月 24 日受付, 1994 年 9 月 21 日掲載決定)

Surface and Thin-Film Analysis by Glancing-Incidence and -Takeoff X-Ray Fluorescence (GIT-XRF) Method

Kouichi TSUJI, Shigeo SATO and Kichinosuke HIROKAWA

Institute for Materials Research, Tohoku University
Katahira 2-1-1, Aoba-ku Sendai 980

(Received August 24, 1994: Accepted September 21, 1994)

In our previous paper on *Takeoff Angle-Dependent X-Ray Fluorescence (TAD-XRF)* method, the dependence of fluorescent X-ray intensity on the takeoff angle is measured, and it is also shown that the characterization of thin films is possible by using the method. In this paper, we present a newly developed analytical method, *Glancing-Incidence and -Takeoff X-Ray Fluorescence (GIT-XRF)* method, to measure the TAD-XRF curves at various incident angles of the primary X-ray.

Compared with conventional total reflection X-ray fluorescence methods, GIT-XRF has unique advantages: (1) The observation depth for the fluorescent X-rays is restricted by both the incident and takeoff angles. Therefore, when the incident angle and the takeoff angle are set to below the critical angle for total reflection, the observation depth becomes extremely small, and a surface-sensitive analysis is achieved. (2) In GIT-XRF, the TAD-XRF curves are measured at various incident angles, and thus the thin film is cross-checked with many experimental curves, and more-detailed analysis of the thin film has been possible.

In this paper, the GIT-XRF of Mn/Au double-layers is reported, and the characteristics of the GIT-XRF method for the surface and thin-film analysis are shown.

1. はじめに

従来, 蛍光 X 線分析法 (X-Ray Fluorescence Spectroscopy; XRF) は金属材料などの固体試料の直接的・非破壊的な組成分析法として用いられてきた。近年, この蛍光 X 線分析法に全反射現象を利用することによって表面・薄膜分析法として用いられるようになった。その基礎となるのは米田らにより提案された全反射蛍光 X 線分析法 (Total Reflection X-Ray Fluorescence; TXRF) である¹⁾。彼らは 1 次 X 線を全反射臨界角以下のすれすれの入射角度で固体表面に照射し, これにより励起された蛍光 X 線を試料表面直上の半導体検出器で測定した。

散乱 X 線によるバックグラウンドが大幅に減少するとともに, 大きな立体角で蛍光 X 線を検出するため, 微量分析が可能であることが示された。現在, 全反射現象を何らかの形で利用している蛍光 X 線分析法は, 測定装置のジオメトリから **Fig. 1** (a), (b), (c) の三つに分類することができる。

(1) 入射角依存-蛍光 X 線分析法 (Incident Angle-Dependent X-Ray Fluorescence; IAD-XRF), または, 斜入射-蛍光 X 線分析法 (Grazing-Incidence X-Ray Fluorescence; GI-XRF)²⁻⁴⁾ (**Fig. 1** (a))

この方法では, 測定装置として, 通常の全反射蛍光 X 線分析装置を用い, 1 次 X 線の入射角を変化させながら

Fig. 1 Schematic diagram of (a) incident angle-dependent X-ray fluorescence, (b) takeoff angle-dependent X-ray fluorescence, and (c) glancing-incidence and -takeoff X-ray fluorescence. Solid arrows and dotted arrows denote primary X-ray beam and fluorescent X-ray beam, respectively.

蛍光 X 線強度の入射角依存性を測定する。半導体検出器は試料の直上にセットされ、蛍光 X 線は測定角 90 度で検出される。1 次 X 線の入射角を変えることにより、1 次 X 線の試料表面への侵入深さは数 nm からサブミクロンオーダーまで変化する。薄膜試料の場合、薄膜内に形成される電場強度分布も変化する。これらの変化に伴い蛍光 X 線の強度も変化する。蛍光 X 線の入射角依存性はフレネルの関係式などを用いて理論的に計算することができ、実験結果と比較しながらデータの解析を行う。これによって、薄膜の組成分析、薄膜の膜厚や密度、表面粗さなどを推定することができる。

(2) 取り出し角依存-蛍光 X 線分析法 (Takeoff Angle-Dependent X-Ray Fluorescence; TAD-XRF)⁶⁻⁷⁾、または、斜出射-蛍光 X 線分析法 (Grazing-Exit X-Ray Fluorescence; GE-XRF)⁸⁾ (Fig. 1 (b))

この方法では、蛍光 X 線強度の取り出し角度依存性を測定する。IAD-XRF 法と同様に、理論計算の結果と対比しながら実験データの解析を行う。この際、観測している蛍光 X 線と同じ波長の X 線が斜入射で試料表面に照射するとして、薄膜内の電場計算を行う。これは、光学における相反定理が X 線領域にも期待されるからである⁹⁾。さらに、相反定理により、(1) の IAD-XRF 法での結果と TAD-XRF 法での結果は同じ情報をもたらすと考えられる。1 次 X 線の入射角は、TAD-XRF 法では全反射臨界角近傍の斜入射角、GE-XRF 法では垂直入射である。

(3) 斜入射・斜出射-蛍光 X 線分析法 (Glancing-Incidence and -Takeoff X-Ray Fluorescence; GIT-XRF)^{10,11)} (Fig. 1 (c))

この方法はわれわれによって初めて提案された方法で

ある。斜入射・斜出射-蛍光 X 線分析法では、Fig. 1 (c) に示されるように、入射角も取り出し角も変化させながら蛍光 X 線強度の入射角・取り出し角依存性を測定する。(1) の IAD-XRF 法と同様に全反射臨界角近傍の斜入射で 1 次 X 線を平坦基板上の (薄膜) 試料に照射し、試料から発せられる蛍光 X 線を (2) の TAD-XRF 法と同様に斜出射で検出する。すでに、TAD-XRF の測定において TAD-XRF 曲線の相対強度とその形が 1 次 X 線の入射角に依存することを報告している。この TAD-XRF 曲線の入射角依存性を積極的に利用するために新たに実験装置を開発し、斜入射・斜出射-蛍光 X 線分析法 (GIT-XRF 法) と呼ぶこととした。得られる情報としては Fig. 1 (a), (b) の分析法と同様に薄膜試料の場合には薄膜の膜厚やその密度であるが、入射角と取り出し角の二つの角度を制御するため前者の分析法と比較してユニークな特徴が付加されると考えられる。

本論文の目的は、この GIT-XRF 法を紹介し、表面・薄膜分析における特徴をシミュレーションと実験データから明らかにすることである。

2. 実験装置

Fig. 2 に GIT-XRF 測定に用いた実験装置を示す。

1 次 X 線としては、回転対陰極-X線発生装置 (RU-200; 理学電機製) を用いて Mo ターゲット 150 mA, 50 kV で発生する X 線を使用した。この X 線を Fig. 2 に示される 2 枚のスリット (slits A, スリット幅; 0.3 mm, 0.1 mm, スリット間隔; 90 mm) でコリメーションして試料に照射した。試料とスリット間の距離は 60 mm, Mo ターゲットとスリット間の距離は約 100 mm である。照射する水平方向の X 線ビーム幅は、2.5 mm とした。また、場合に応じて、Mo K β をカットする目的で厚さ 50 μ m, 25 μ m の Zr 薄膜を使用した。この試料の照射位置は、ゴニオメーター Rx と Ry の回転軸上にある。slits A は取り出し角制御用のゴニオメーター (Ry) に直接取り付けられており、Ry と連動して回転する。よって、ゴニオメーター Ry を動かして取り出し角を変化させても、試料表面上には常に同じ強度の 1 次 X 線が同じ面積で照射している。1 次 X 線の入射角度 (θ_{in}) はゴニオメーター Rx を動かして制御した。

蛍光 X 線は 2 枚のスリット (slits B, スリット幅; 0.1 mm, 0.05 mm, スリット間隔; 90 mm) で検出角度を限定しながら、高純度 Si 半導体検出器 (SHP; 堀場製) で検出した。試料と slits B 間の距離は 60 mm である。この slits B はゴニオメーター全体を保持している底板上に設置されているが、ゴニオメーター Rx の動きと連動させている。よって、Rx を動かして入射角度を変化

Fig. 2 Experimental setup for GIT-XRF measurement.

させても試料と slits B の位置関係は常に同じに保たれる。蛍光 X 線の取り出し角度 (θ_{out}) はゴニオメーター Ry で制御した。Ry を動かしても slits B は動かないように設計されている。

高純度 Si 半導体検出器で検出された蛍光 X 線はリニアアンプで増幅され、マルチチャンネルアナライザー (MCA/PC 98 B, Laboratory Equipment 製) で波高分析した。ゴニオメーター Rx, Ry (goniometer head 5203.1, Huber 製) はステッピングモーター駆動であり、ロータリーエンコーダー (E6 D-CWZ 2 C, Omron 製) を取り付けて制御の精度を上げている。Rx, Ry の回転角度は 0.01 mrad の精度で制御することができる。以上の検出系と駆動系はパーソナルコンピュータで制御している。なお、スリット系 (slits A, slits B) は、東北大学金属材料研究所附属の工場で作製したものである。

Fig. 2 の装置を用いて、任意の取り出し角度、任意の入射角度における蛍光 X 線分析が可能である。

3. 斜入射・斜出射条件下における蛍光 X 線強度の理論計算

GIT-XRF 法ではいろいろな入射角度での TAD-XRF 曲線を理論計算曲線と比較しながら解析を行うため、本章で斜入射・斜出射条件下での蛍光 X 線強度の計算方法について述べる。すでに、入射角依存・蛍光 X 線分析法 (IAD-XRF) や斜出射蛍光 X 線分析法において蛍光 X 線強度の入射角度依存性や取り出し角度依存性がフレネルの関係式を用いて計算されている。GIT-XRF 法では斜入射過程と斜出射過程が共存するので、これらの計算方法を組合せて斜入射・斜出射条件下における蛍光 X 線強度の計算を行った^{6,7)}。

Fig. 3 に計算に用いた均質な多層膜モデルを示す。ここでは、入射角 (θ_{in}) と取り出し角 (θ_{out}) はそれぞれの全反射臨界角近傍の数 mrad を考える。1 次 X 線が j

Fig. 3 Illustration of multilayer materials for calculation of GIT-XRF intensity.

層に入射する際の屈折率は一般に次式で表わされる。

$$n_{pj} = 1 - \delta_{pj} - i\beta_{pj} \quad (1)$$

ここで、 δ と β は X 線の波長と X 線が照射する物質によって異なるが、 $10^{-5} \sim 10^{-7}$ のオーダーである。下付きの添字 p は 1 次 X 線 (Primary X-ray) に対する値であることを意味している。Fig. 3 の左側では 1 次 X 線の入射過程を示している。 j 層中の深さ z における電場 $E_{pj}(z)$ は透過 X 線電場 E'_{pj} の寄与分と反射 X 線電場 E''_{pj} の寄与分の和として次式で表わされる。

$$E_{pj}(z) = E'_{pj} \exp(-i2\pi N_{pj} z / \lambda_p) + E''_{pj} \exp(i2\pi N_{pj} z / \lambda_p) \quad (2)$$

ここで、 λ_p は入射 X 線の波長で、 N_{pj} は屈折角に相当し次式で与えられる。

$$N_{pj} = (\theta_{in}^2 - 2\delta_{pj} - 2i\beta_{pj})^{1/2} \quad (3)$$

j 層の深さ z からは、(2) 式の合成電場強度に比例する強度の蛍光 X 線が発せられることになる。蛍光 X 線の出射過程を Fig. 3 の右側に示す。光学における相反定理では、“A 点の光源から発せられた電磁波を B 点で観測することと、B 点に置かれた同じ光源からの電磁波を A 点で観測することは同等である”ことを述べている¹²⁾。この相反定理が X 線領域でも期待されるので⁹⁾、

観測する蛍光 X 線と同じ波長の X 線 (λ_f) が入射すると仮定して (2) 式の入射過程での計算と同様に計算した。ただし, (1)~(3) 式において θ_{in} を θ_{out} に, 添字 p を f (Fluorescence) に置き換えて蛍光 X 線波長に対する数値を用いた。さらに, z において発生する蛍光 X 線強度は励起 X 線強度に比例するので, (2) 式の電場強度を有する (蛍光) X 線が入射すると考えた。よって, 最終的に斜入射・斜出射条件下で観測される j 層からの蛍光 X 線強度 (I_{fj}) は次式のように深さ z に関して 0 から薄膜の膜厚 d_j まで電場強度を積分して求めた。

$$I_{fj} = \text{const} \cdot \int_0^{d_j} |E_{pj}(z) \times E_{fj}(z)|^2 dz \quad (4)$$

すでに, さまざまな金属薄膜の TAD-XRF 曲線の膜厚依存性や入射角依存性についての実験結果を (4) 式を用いたシミュレーション曲線で説明できることを報告している^{6,7)}。さらに, Fig. 3 や (4) 式において取り出し角度 (θ_{out}) を 90 度とすると Fig. 1 (a) の IAD-XRF 法におけるシミュレーション曲線が得られ, 入射角度 (θ_{in}) を 90 度とすると Fig. 1 (b) の GE-XRF 法でのシミュレーション曲線を計算することができる。よって, Fig. 3 の計算モデルや (4) 式は蛍光 X 線強度を求める際のより一般的な計算モデルと理論式であるといえる。

4. GIT-XRF 法の特徴

4.1 高感度表面分析の可能性

4.1.1 観測深さの計算

全反射蛍光 X 線分析法が表面分析に有効である理由は, 全反射条件下において X 線の侵入深さが数 nm と小さいことにある。ここで, X 線の侵入深さ Λ_{in} は, 通常, 入射 X 線の強度が $1/e$ に減少する深さと定義されており, 次式で与えられる。

$$\Lambda_{in} = -1 / \{2k_p \text{Im}(N_p)\} \quad (5)$$

ただし, k_p は入射 X 線の波数ベクトルである。(5) 式を入射角 θ_{in} の関数としてグラフにすると Fig. 4 (a) のようになる。ここでは, 入射 X 線として Mo K α , 入射する基板として Au を仮定している。Mo K α の Au に対する全反射臨界角 θ_c は約 4.5 mrad であるが, この角度を境にして Λ_{in} が大きく変化していることがわかる。

3 章で述べたように, GIT-XRF における蛍光 X 線の斜出射過程における電場計算は, 観測する蛍光 X 線と同じ波長の X 線が入射したと仮定して計算を行っている。よって, 蛍光 X 線の検出深さ Λ_{out} を (5) 式と同様の次式で記述することができる。

$$\Lambda_{out} = -1 / \{2k_f \text{Im}(N_f)\} \quad (6)$$

さらに, 本節の目的である蛍光 X 線の観測深さ Λ_{obs} はつぎの関係式で記述される。

$$1/\Lambda_{obs} = 1/\Lambda_{in} + 1/\Lambda_{out} \quad (7)$$

(5), (6), (7) 式の関係式を用いて Λ_{obs} の取り出し角度依存性, 入射角度依存性を計算した結果を Fig. 4 (b) に示す。観測する蛍光 X 線として Au L α を仮定した。取り出し角度依存性においては, 取り出し角度 8 mrad 近傍で観測深さが急激に変化していることがわかる。これは, Au L α の Au 基板に対する全反射臨界角が 7.9 mrad であることに対応している。さらに, Fig. 4 (b) において入射角度依存性を観てみると入射角 3 mrad と 5 mrad の間で急激に観測深さが変化していることがわかる。これは Mo K α の Au に対する全反射臨界角 θ_c が 4.5 mrad であるためである。

なお, 観測深さ Λ_{obs} は本来の定義に従って求めることもできる。つまり, 斜入射・斜出射条件下での観測される蛍光 X 線の基板表面上での電場強度は $|E_{pj}(z) \times E_{fj}(z)|^2$ で与えられるので, この強度が $1/e$ に減少する深さを入射角と取り出し角を変化させながら求めれば

Fig. 4 (a) Penetration depth of primary X-ray (Mo K α) into Au substrate as a function of incident angle. (b) Observation depth of fluorescent X-ray (Au L α) emitted from Au substrate as a function of takeoff angle at various incident angles.

よい。このようにして求めた Δ_{obs} の角度依存性は、Fig. 4 (b)に示されるように(7)式から求めた Δ_{obs} と完全に一致する。

結論として、入射角も取り出し角もそれぞれの全反射臨界角以下に設定すると、観測深さはきわめて小さくなるということが明らかとなった。たとえば、Fig. 4 (b)において入射角 3 mrad, 取り出し角 5 mrad 以下では、観測深さは 0.7 nm である。つまり、観測深さの計算から、GIT-XRF 法は高感度表面分析法としての可能性を有していることが予言された。

4.1.2 実験結果

Mn(2 nm)/Au(100 nm)/quartz glass の真空蒸着薄膜を作製し、GIT-XRF 測定を行った。真空蒸着は、 1×10^{-4} Pa の真空チャンパー内で抵抗加熱法により行った。試料作製手順などについては、他で詳しく述べている^{6,7)}。Fig. 5 (a)に入射角 10 mrad, 取り出し角 20 mrad で測定した GIT-XRF スペクトルを示す。最表面に存在している Mn 薄膜からの Mn L α や Mn L β は、ほとんど観測されず、Au L α と Au L β が主に観測されている。

つぎに、入射角を 0.5 mrad, 取り出し角を 9.5 mrad で測定した GIT-XRF スペクトルを Fig. 5 (b)に示す。入射角も取り出し角も全反射臨界角以下なので、Fig. 4 (b)から予想されるように、Au の蛍光 X 線の観測深さはきわめて小さいはずである。このため、Fig. 5 (b)のように、最表面に存在する Mn の蛍光 X 線が Au の蛍光 X 線と比較して相対的に大きく観測された。つまり、入射角も取り出し角も全反射臨界角以下に設定することによって表面に敏感な分析が可能となることが確認された。

さらに、Mn K α 強度と Au L α 強度の強度比が入射角度とともにどのように変化したかを Fig. 6 に示す。この測定は取り出し角度を 9.5 mrad に保ったまま行った。1 次 X 線の入射角が 4 mrad 以下になると急激に強度比 (Mn K α /Au L α) が増加している。これは、Mo K α の Au 基板に対する全反射臨界角が 4.5 mrad であり、入射角がこの角度以下になると Au 薄膜表面上で全反射現象が生じ、最表面に存在する Mn が X 線定在波で選択的に励起されるとともに Au 内部への X 線の侵入深さが減少したためである。この結果からも、GIT-XRF 法が高感度表面分析として有用であることがわかった。

4.2 詳細な薄膜分析の可能性

4.2.1 GIT-XRF 曲線の計算

(4)式の理論式を用いて、さまざまな入射角度における TAD-XRF 曲線を計算した。Au (40 nm)/quartz glass 試料での Au L α に対する計算結果を Fig. 7 に

Fig. 5 GIT-XRF spectra of Mn(2 nm)/Au(100 nm) double layers on quartz glass measured at (a) incident angle of 10 mrad and takeoff angle of 20 mrad; (b) incident angle of 0.5 mrad and takeoff angle of 9.5 mrad.

Fig. 6 Intensity Ratio Mn K α /Au L α at takeoff angle of 9.5 mrad as a function of incident angle.

示す。1 次 X 線として Mo K α を考え、入射角度を 0~10 mrad まで 1 mrad おきに設定して計算した。第 1 の特徴として、TAD-XRF 曲線の強度が入射角に応じて劇的に変化することが挙げられる。この変化は、

Fig. 7 Three-dimensional plots of calculated GIT-XRF of Au $L\alpha$ from Au thin film of 40 nm thick on quartz glass.

入射角依存性において、Mo $K\alpha$ の Au での全反射臨界角 (4.5 mrad) を境にして生じている。第2の特徴として、TAD-XRF 曲線の形も入射角に応じて変化していることに注目しなければならない。たとえば、Fig. 7 において入射角 4 mrad のときの TAD-XRF 曲線には取り出し角 8 mrad 近傍で比較的鋭いピークが観測されるが、入射角 10 mrad では鋭いピークは観測されず取り出し角度 10 mrad 以上においてはほぼ一定の強度となっている。つまり、TAD-XRF 曲線の相対的な強度もその形も入射角に応じて変化することが数値シミュレーションより明らかとなった。

1章で分類した Fig. 1 (a)と(b)の蛍光X線分析法では、入射角、もしくは、取り出し角のどちらか一方のみを変化させながら実験を行う。その結果、1組の実験データが得られ、この実験データに対してシミュレーション曲線を合わせて解析を行う。一方、GIT-XRF 測定では、入射角依存性と取り出し角依存性の2種類の測定を行う。実際には、取り出し角依存曲線 (TAD-XRF 曲線) を入射角を変化させながら測定する (逆に、入射角依存性曲線を取り出し角を変化させながら測定してもかまわない)。よって、ひとつの試料に対して複数の TAD-XRF 曲線が得られる。これらの実験データに対してシミュレーション曲線をフィッティングして解析するので実験データはクロスチェックされ、より詳細な薄膜分析が可能であると考えられる。

4.2.2 実験結果

Mn (2 nm)/Au (100 nm)/quartz glass の蒸着薄膜について GIT-XRF 測定を行った。1次 X 線の入射角は任意の角度に設定して測定が可能であるが、ここでは入射角 2 mrad, 8 rad の結果のみを Fig. 8 (a), (b) に示す。Fig. 8 (a) では、入射角が全反射臨界角以下なの

Fig. 8 GIT-XRF curves of Mn $K\alpha$ and Au $L\alpha$ from Mn (2 nm)/Au (100 nm) on quartz glass at incident angle of 2 mrad (a) and 8 mrad (b). Solid circles (Au $L\alpha$) and Solid triangles (Mn $K\alpha$) denote experimental results, and calculated results are denoted by dotted-line and double dotted-line, respectively.

で最表面に存在する Mn からの蛍光 X 線強度が Au $L\alpha$ に比較して強く観測されている。入射角が増大するにつれ下地の Au からの蛍光 X 線が強く観測され、Fig. 8 (b) では Au $L\alpha$ の Mn $K\alpha$ に対する相対強度が非常に強いことがわかる。前節でのシミュレーション結果から予想されたとおり、TAD-XRF 曲線の強度もその形も入射角に依存して変化することが実験結果から確かめられた。

(4)式を用いて計算した結果を Fig. 8 (a), (b) に1点鎖線、2点鎖線で示す。バルクの金の密度は 19.3 g/cm^3 であるが、実験結果と合わせるために 17.5 g/cm^3 として計算を行った。また、試料を X 線光電子分光測定した結果、Mn は MnO として存在していることが明らかとなった。よって、シミュレーションにおいても MnO 層として取り扱った。2 nm の MnO 層は均一な連続膜として存在しているのではなく、不均質な不連続膜であると考えられる。実際、この試料の表面を触針計 (Talystep)

で粗さ測定したところ, $R_{\max}$ (最大山-最小谷間の距離) が 14.8 nm, R_a (平均粗さ) が 1.6 nm であった。そこで, MnO 層の膜厚として 0 nm, 2 nm, 4 nm, 6 nm, 8 nm, 10 nm の膜厚を仮定し, その総和として入射角 2 mrad に対する Fig. 8 (a) の鎖線のシミュレーション曲線を得た。この計算曲線は実験データと良い一致を示している。これと同じシミュレーション-パラメータを用いて入射角 8 mrad での計算を行った。その結果を Fig. 8 (b) の鎖線曲線で示す。Fig. 8 (a) と同様に, 実験結果と良い一致を示していることがわかる。

このように, GIT-XRF 法の場合, ある実験結果に対するフィッティングで得たシミュレーション-パラメータの妥当性を別の実験結果で確認することができる。この点が GIT-XRF 法の特徴のひとつであり, より詳細な薄膜分析が可能であることが確認された。

謝辞 本研究の一部は文部省科学研究費 (05750021) により行われたものであり深く感謝いたします。さらに, X線発生装置の維持・管理に協力いただいた佐藤多作氏に感謝いたします。

文 献

- 1) Y. Yoneda and T. Horiuchi: Rev. Sci. Instrum. **42**, 1069 (1971).
- 2) D. K. G. de Boer: Phys. Rev. B **44**, 498 (1991).
- 3) A. Iida: Adv. X-ray Anal. **34**, 23 (1991).
- 4) U. Weisbrod, R. Gutschke, J. Knoth and H. Schwenke: Appl. Phys. A **53**, 449 (1991).
- 5) Y. Sasaki and K. Hirokawa: Appl. Phys. A **50**, 397 (1990).
- 6) K. Tsuji and K. Hirokawa: Spectrochim. Acta B **48**, 1471 (1993).
- 7) K. Tsuji and K. Hirokawa: J. Appl. Phys. **75**, 7189 (1994).
- 8) T. Noma, H. Miyata and S. Ino: Jpn. J. Appl. Phys. **31**, L900 (1992).
- 9) R. S. Becker, J. A. Golovchenko and J. R. Patel: Phys. Rev. Lett. **50**, 153 (1983).
- 10) K. Tsuji, S. Sato and K. Hirokawa: Jpn. J. Appl. Phys. **33**, L1277 (1994).
- 11) K. Tsuji, S. Sato and K. Hirokawa: J. Appl. Phys. in press.
- 12) M. Born and E. Wolf: "Principles of Optics" (Pergamon, Oxford, 1991) p. 381.