STM と AFM を用いた $(\text{NH}_4)_2\text{S}_x$ 処理 GaAs (100)

表面構造の観察[†]

谷本 正文・横山 春喜・篠原 正典・井上 直久

NTT LSI 研究所 ㊟243-01 神奈川県厚木市森の里若宮 3-1

(1994 年 2 月 21 日受付, 1994 年 3 月 9 日掲載決定)

STM and AFM Observations of $(\text{NH}_4)_2\text{S}_x$ -Treated GaAs (100) Surfaces

Masafumi TANIMOTO, Haruki YOKOYAMA, Masanori SHINOHARA
and Naohisa INOUE

NTT LSI Laboratories, Atugishi, Kanagawa 243-01

(Received February 21, 1994: Accepted March 9, 1994)

The atomic structure of $(\text{NH}_4)_2\text{S}_x$ -treated and annealed GaAs surface has been investigated using scanning tunneling microscopy (STM) and atomic force microscopy (AFM). STM observation revealed that most of the GaAs flat surfaces showing 2×1 structure are terminated with Ga-S bonds and that the sulfur monolayer forms dimers after being annealed at 510°C . Surface structural parameters such as S-S dimer bond length and Ga-S distance in the $[100]$ direction are determined and found to be in good agreement with the theoretically calculated values. A sulfur overlayer is also observed. The second S layer has a $2 \times$ structure in both $[100]$ and $[1\bar{1}0]$ directions, but the third layer does not show any ordered structures. AFM observation shows that the S-treated and annealed GaAs is covered with a thin S layer in a wide area and that many circular S residuals reside on the surface. These results reveal that the surface is covered not only with an S monolayer but also with an S multilayer even with high-temperature annealing at 510°C .

1. ま え が き

高性能化合物半導体デバイスを実現するために、半導体の表面単位密度を低減し、ピニングされない金属/半導体界面が形成可能なパッシベーション技術が用いられるようになってきている¹⁻⁷⁾。これらの技術では半導体表面を S や Se 原子で終端することにより表面の安定化をはかっている。GaAs で広く用いられているパッシベーション技術は、硫化アンモニウム $(\text{NH}_4)_2\text{S}_x$ 溶液を用いた処理技術 (S 処理) である。S 処理した GaAs 表面の構造や電気的特性についてはこれまでに、種々の表面分析法や電気特性測定法を用いて評価がなされてき

た。その結果、S 処理した半導体表面の構造や半導体/金属界面特性は、アニールにより大きく変化することが明らかとなっている。したがって、パッシベーション機構を明らかにするためには、表面の構造およびそのアニール効果を理解することが重要と考えられる。

これまでに、高エネルギー電子線回折 (RHEED) を用いた表面構造解析から、S 処理した GaAs 表面構造は 400°C 程度の真空アニールにより 1×1 構造から 2×1 構造に変化することがわかっている^{8,9)}。また、光電子分光からアニール後の表面は熱的に安定な Ga-S 結合が多く存在し、また 1 層の S で覆われていることが示されている^{4,10)}。さらに Al/GaAs 界面特性の測定では、清浄な GaAs (100) c (2×8) と Al の界面はショットキー特性を示すが、 427°C のアニールで形成された S(2×1)/GaAs

[†] 第 13 回表面科学講演大会 (1993 年 11 月 30 日~12 月 2 日) にて発表

(100) と Al の界面はオーミック特性を示すことが報告されている¹¹⁾。

一方、第一原理的擬ポテンシャル法を用いた S/GaAs 系についての理論計算結果から、S 処理した GaAs 表面では Ga-S 結合が安定であり、Ga 原子のブリッジサイトに位置する S 原子はダイマを形成することが示されている^{12,13)}。

S 処理した GaAs の表面構造を決定するため、原子分解能を有する走査型トンネル顕微鏡 (STM) を用いた解析がこれまで試みられてきたが、原子レベルで表面構造の観察に成功した報告例はなく¹⁴⁻¹⁶⁾、またこれまでの STM 観察は主にバルク基板について行われている。われわれは STM 観察ができない理由として、以下に述べる二つの要因に注目した。その第 1 の要因は、観察に用いる基板の平坦性の不足である。このことは、分子線エピタキシー (MBE) 成長した GaAs を S 処理した場合のほうで、バルク基板を用いた場合よりも表面再配列構造に対応した明瞭な低エネルギー電子線解析 (LEED) パターンが得られる¹⁷⁾ことから示唆される。第 2 の要因はアニールの不完全性である。これまでに報告されている STM 像は試料表面の凹凸が大きく、また周期性をもたないことから、400°C 程度でアニールした GaAs 表面には脱離が不十分な多層の S が存在していることが推測される。

このためわれわれは、MBE 法よりも表面の平坦性に優れた有機金属気層成長 (MOCVD) 法で形成した GaAs¹⁸⁾ を基板として用い、また均一な S 単層を得るために従来用いられている温度よりも高い 500°C 以上の温度でアニールを行った。本論文では S 処理 GaAs 表面構造を STM と原子間力顕微鏡 (AFM) を用いて調べた結果を述べる。STM 観察では真空中アニールした S 処理 GaAs 表面の原子レベルの構造を、また AFM 測定では S 処理後および、アニール後の GaAs 表面の μm レベルの構造を明らかにした。STM 観察像からは、Ga 原子と結合した S 原子は表面でダイマを形成していること、また多層の S の表面構造が明らかとなった¹⁹⁾。さらに AFM 観察からは、アニール後の表面の大部分は 3 層以下の S でほぼ均一に覆われているが、従来報告されているよりも高い温度でアニールしても膜厚が数 nm 程度と厚い領域が存在することが明らかとなった。

2. 実験手順

基板として MOCVD 法で成長した Si ドープ GaAs (100) ($n=5\times 10^{18}\text{cm}^{-3}$) を用いた。成長は縦形の減圧 CVD 炉を用い、半絶縁性 GaAs(100) 正方位基板上に $1.5\mu\text{m}$ 成長した。原料ガスとしてトリメチルガリウム

(TMG) とアルシンを用いた。成長温度は 650°C、成長炉内真空度は $9.3\times 10^3\text{Pa}$ であり、成長速度は 0.3nm/s であった。この条件で成長した GaAs 表面は、1 分子層高さのステップで分けられた幅 300 nm 以上のテラスが形成され平坦になっていることを AFM 観察で確認した。

HCl 洗浄により成長層表面の酸化膜を除去した後、室温で硫化アンモニウム溶液 ($(\text{NH}_4)_2\text{S}_x$) に試料を 25 分間浸漬することにより S 処理を行い、試料表面は窒素ガスをを用いて乾燥した。試料は超高真空 STM チャンバ内でアニールと STM 観察を行った。アニールは $4\times 10^{-7}\text{Pa}$ の高真空中で MOCVD 成長した GaAs 層に直流電流を流し、試料を直接加熱することにより行った。試料温度は半絶縁性基板の裏側から熱電対を接触させ測定した。この方法での表面温度の校正は基板上の金属および半導体の融点を測定することにより行った。

アニール中の表面構造を観察するために RHEED を用いた。本研究では 510°C と比較的高いアニール温度を用いたが、この温度でも観察された 2×1 構造に変化はなかった。アニール後室温まで試料を冷却し、真空を破らずに STM チャンバへ試料を搬送した。

STM 観察はチャンバ内圧力 $1\times 10^{-8}\text{Pa}$ で室温で行った。STM 像は試料電圧 +2V、トンネル電流 0.2 nA の条件で、低電流モードで得た。探針には電界研磨で製作した W 探針を用いた。

S 処理後の AFM 観察は、STM 観察に用いた試料と同時に S 処理した試料を 10 Pa の真空中に 20 分程度置き、試料表面が鏡面となった後で行った。アニール後については、STM 観察後真空チャンバから試料を取り出し大気中雰囲気で行った。AFM 像は金コートした Si_3N_4 カンチレバーを用い、コンタクトモードで得た。

3. 測定結果

3.1 RHEED 測定

S 処理後の GaAs 表面は 1×1 RHEED パターンを示すが、試料温度を 420°C まで上げると 2×1 パターンが現れ始め、さらに 510°C まで昇温すると明瞭な 2×1 パターンが得られた。Fig. 1 (a) には $[110]$ 方向入射、ビームエネルギー 10 keV の条件で得られた 2×1 パターンを示す。Fig. 1 (a) に示す RHEED パターンは、明瞭なスペキュラスポットとストリーキーなパターンを示し、バルク基板を用いた場合^{9,14)} に比べて平坦な表面が形成されていることがわかる。明瞭な 2×1 パターンは 13 keV 以下の比較的低いビームエネルギー条件で得られ、Fig. 1 (b) に示すような 20 keV の高ビームエネルギー条件では得られなかった。この結果から MOCVD 法で

Fig. 1 RHEED patterns from the $(\text{NH}_4)_2\text{S}_x$ -treated GaAs surface after annealing at 510°C . The beam energy is (a) 10 keV and (b) 20 keV.

形成された幅広いテラスはS処理によっても変化せず、 2×1 再構成構造はこのテラス上に形成されていると考えられる。

3.2 STM 測定

500°C以下の低温でアニールした弱い 2×1 RHEEDパターンを示す試料では原子レベルの構造を示すSTM像は観察できなかったが、 510°C でアニールした試料の平坦領域では、Fig. 2(a)に示すようにGaAs(100)表面のSの構造が観察された。このSTM像から $[1\bar{1}0]$ 方向に周期性をもつ、 $[110]$ 方向に延びた列構造が観察される。列構造の間隔は0.8 nmであり、STM像での

凹凸は0.1 nm以下である。これらの再配列表面構造は、S処理していないMBE法で成長したGaAs(100)表面で観察される $(2\times 4)/c(2\times 8)$ 構造のように広い領域にわたって連続的には形成されておらず、 $6\text{ nm}\times 6\text{ nm}$ 程度の広さのドメイン構造が観察される。しかし、この図からS処理とアニールを行ってもMOCVD法で形成された平坦なGaAs表面構造は保存されていることがわかる。

Fig. 2(a)に示すSTM像から、列構造の詳細な構造を決定することができた。Fig. 2(a)に示すA-B間の断面構造をFig. 2(b)に示す。この図から0.8 nm間隔で並んでいるそれぞれの列は二つのピークをもち、その間隔はGaAs(100)面におけるAs(Ga)原子間距離0.4 nmより短く、0.30 nmから0.35 nmの値であることがわかった。列構造が $[110]$ 方向に延びていることと、それぞれの列構造が二つのピークを有していることから、これらの列構造はGa原子と結合しているSがダイマを形成しているものと考えられる。Sダイマの $[1\bar{1}0]$ 方向の周期性は $[1\bar{1}0]$ 方向に比べて明瞭ではないが、その値は0.3 nmから0.5 nmの間に分散していた。

Fig. 3は周期性が崩れた領域の高倍率STM像であ

Fig. 2 (a) Constant-current STM image of $(\text{NH}_4)_2\text{S}_x$ -treated GaAs surface $30\times 30\text{ nm}^2$ in area after annealing at 510°C . Sample voltage of 2 V and tunneling current of 0.2 nA were used. (b) Cross-sectional view along A-B in (a).

Fig. 3 STM image of a disordered region at high magnification. Scanning area is $10\times 10\text{ nm}^2$.

Fig. 4 AFM image of $(\text{NH}_4)_2\text{S}_x$ -treated GaAs surface annealed at 510°C . Scanning area is $5 \times 5 \mu\text{m}^2$. Circular structures are sulfur residuals.

る。図の中央部ではダイマ列が欠落しており、この領域ではSが脱離して最表面にGa原子が現れていると考えられる。ダイマ欠損部のSTM像の深さは0.15 nmであり、この値は[100]方向のS原子とGa原子間距離に対応すると考えられるが、観察している原子が異なるのであいまいさは残る。

さらにFig. 2(a)ではSの多層構造が観察されており、同図の右端のCおよびD領域がこれに対応する。領域Cでは、 $2 \times$ 構造が[110]と $[1\bar{1}0]$ 両方向に形成されており、S第1層からの高さは0.2 nmであった。基板として用いたGaAs表面のテラス上の凹凸が1分子層高さ以下と平坦であるから、この凸領域は2層のSで構成されていると考えられる。一方、Fig. 2(a)のD領域は第1層目から0.4 nm高く、したがって3層のSから構成されていると考えられるが、特徴的な表面再配列構造を示さないことがわかった。

3.3 AFM 測定

STM観察で 2×1 構造が観察されたアニールしたS処理GaAs表面のAFM像をFig. 4に示す。AFM像は基板のGaAsのテラス構造を反映した平坦で1分子層高さのステップをもつ表面構造を示し、試料表面が広い領域で均一な厚さのSの連続膜で覆われていることがわかった。しかし、試料表面には直径700 nm、高さ数nm程度のリング状の構造をもつSの残留物が存在していることが明らかとなった。この残留物は試料の全領域で観察できるが、その密度は観察場所により5倍程度異なる。このSの残留物がリング状の構造をもつこと、さらに4.4で述べるようにアニールする前でもこの残留物が観察されたことから、この構造は試料を硫化アンモニウム溶液から引き上げるときに試料表面で溶液が液滴になり、これが乾燥する段階でリング状に残ることによ

Fig. 5 AFM image of $(\text{NH}_4)\text{S}_x$ -treated GaAs surface annealed at 510°C . Scanning area is $2.5 \times 2.5 \mu\text{m}^2$. Hole in the central region $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ in area is scratched out by AFM tip.

り形成されたと考えられる。

さらに、AFM探針により表面のSを削り取れること、またこの手法（切削法）を用いることによりSの膜厚を推定できることが明らかとなった。Fig. 5に示すAFM像の中央の $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ の暗い領域は、このAFM像を得る前に10回のスキャンを行った場所で他の領域よりも凹んでおり、Sが削り取られているのがわかる。この方法を用いてAFM像の平坦領域でのSの膜厚を推定したところ、削り取れた量が0.15から0.50 nmの値に分散していたことから、1~3層程度のSが堆積していることがわかった。本手法でGa面までSを削り取ることができているかはAFM像から判断できないため、推定したS層の膜厚にはあいまいさが残るが、これらの結果からアニール後の試料表面の総ての領域が平坦な1層のSで覆われているわけではないことが明らかとなった。

アニール前の試料表面構造を評価した結果をFig. 6に示す。Fig. 6(a)に示す領域では、Fig. 4と同様にGaAs基板のテラス構造を反映したAFM像とリング状の構造が観察されており、広い領域で平坦なS膜がGaAs表面に形成されていることがわかる。アニール後の試料表面に比べてステップやリングが見にくいのはS層が厚いためである。AFM探針を用いてS層を削ったあとが同図の中央の暗領域であり、削り取られたSの膜厚は1 nm程度であった。この結果、アニールをしなくてもS処理をしただけで、この領域ではSの薄膜が形成されていることがわかった。一方、Fig. 6(b)に示す領域では上記の場合とは異なり、基板のテラス構造を反映した表面構造は観察されず、また表面のリング状構造の幅がFig. 6(a)のAFM像と比べて狭いことから、この領域ではより厚いS膜が形成されていると考えられる。したがって、S処理により形成されるSの膜厚は、

Fig. 6 AFM images of as-treated GaAs surface of (a) thin S layer region and (b) thick S layer region. Hole in the central $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ in area is scratched out by AFM tip. Scanning area is $2.5 \times 2.5 \mu\text{m}^2$.

試料表面位置で大きく異なっていることが明らかとなった。

4. 考 察

4.1 アニールした S 処理 GaAs 表面構造モデル

3.2 で述べた STM 観察結果から決定された、単層の S で覆われているアニールした S 処理 GaAs 表面の原子構造モデルを **Fig. 7** に示す。GaAs 表面は S が As と置換することにより Ga-S 結合で終端され、S 原子は $[1\bar{1}0]$ 方向にダイマ構造を形成している。S ダイマの結合距離は STM 測定から $0.30 \sim 0.35 \text{ nm}$ と定められたが、この値は GaAs (100) 面における As(Ga) 原子間距離の 0.4 nm より 20% 程度短い。S ダイマは Ga 原子の 0.15 nm 上に位置しこの値は、 $[100]$ 方向の Ga(As) 原子間距離とほぼ同じである。

これらの STM 測定から定められた表面構造特性値を、大野ら^{12,13)}による理論計算結果と以下に比較する。

Fig. 7 Model of the $(\text{NH}_4)_2\text{S}_x$ -treated GaAs surface. The surface shows 2×1 reconstruction.

彼らの計算結果では、S 原子は Ga のブリッジサイトが最も安定であり、かつダイマを形成し、その原子間距離はダイマを形成していない場合に比較して 16% 小さくなることが示されている。測定された S ダイマ原子の間隔の値 (0.30 nm から 0.35 nm) は計算値 0.34 nm とよく一致する。さらに、 $[100]$ 方向の Ga-S 原子間距離 0.15 nm は計算値 0.11 nm に近い。このように STM 観察から得られた結果は理論計算結果とよい一致を示している。さらにこのモデルは、菅原ら²⁰⁾が適当なアニール条件により S 吸着量を一層にした GaAs 表面について得た、Ga-S 結合が表面で形成されていることを示す光電子分光の結果や、LEED パターンから推定した表面再配列構造と一致している。

4.2 S 多層構造と STM 観察

これまで報告されている低エネルギー電子エネルギー損失分光 (LEELS)²¹⁾や光電子分光^{4,10)}測定の結果では、アニールした S 処理 GaAs 表面は **Fig. 7** に示すような単層の S 原子で覆われていると結論されている。しかし、STM を用いた測定でわれわれは **Fig. 2(a)** に示すような平坦な表面構造以外に、数 nm 以下の凹凸構造を多く観察した。さらに **Fig. 4** に示す AFM 観察結果から、表面には S の残留物が存在することがわかった。したがって 510°C の高温アニールを行っても試料表面を単層の S ですべて覆うことはできていない。これまで行われた STM 観察では試料を 400°C 程度の低温でアニールしていたため、 2×1 構造を示さない多層の S が広い領域で存在し、凹凸の大きな周期性のない STM 像しか観

察されなかったと考えられる。

4.3 アニール効果と表面構造

アニールによる S 処理 GaAs 表面構造の変化、また STM で観察された連続性の弱い 2×1 表面構造が形成される理由は以下のように説明できる。S 処理表面には多層の S が吸着し、GaAs との界面には Ga-S 結合と As-S 結合が混在している。RHEED パターンが変化し始める 420°C でのアニールで過剰な S の脱離が始まり、また As と S の置換反応が促進される^{4,10)}。その結果 Ga-S で終端された単層の S で被覆された領域には 2×1 再配列構造が形成されてくるが、その領域の大きさが十分でないために RHEED パターンは明瞭でない。さらに試料温度を 510°C まで上げてアニールすることにより過剰な S 層の脱離と As と S の置換を促進することができ、その結果 2×1 再配列構造の領域が広がり、明瞭な RHEED パターンとこれに対応する STM 像を得ることができるようになる。しかし、Ga-S 結合が切れ単層の S の脱離がこの温度付近で起き始めるので、表面構造の連続性が弱まってしまうと考えられる。S の脱離に関しては Massies ら¹¹⁾によって真空蒸着法を用いて調べられている。室温での蒸着後に観察される 1×1 構造は、 427°C でのアニールで 2×1 再配列構造へ変化し、 527°C のアニールにより完全に除かれることが示されている。われわれも今回同様な表面構造の変化および S の脱離のアニール温度依存性を観察している。これらの結果から、完全な 2×1 表面再配列構造は、従来報告されているアニール温度 (約 400°C) より高く、かつ 510°C より低い温度で得られる可能性がある。

4.4 S 処理を用いたパッシベーション法の問題点

安定で再現性の良いパッシベーション効果を得るためには、均一な S 膜を形成しアニールにより薄層化をはかることが必要である^{4,9-11,17,20)}。われわれは膜厚の厚いリング状の S 残留物が形成されないように、S 処理溶液を水で置換し、その後試料を窒素ガスで乾燥する方法を試みた。しかし AFM 観察から、試料表面にはリング状の構造でなく直径数 10 nm 程度の少量の S 残留物が観察されたが、表面は S 薄膜で覆われていないことが切削法によりわかった。

一方 Fig. 4 と Fig. 6 に示した結果から、S 処理で形成された厚い S 膜でも平坦な S 膜は薄層化されることがわかるが、リング状構造付近の厚い S 膜は高温でのアニールでも薄層化されないことが AFM 測定から明らかとなった。Fig. 8 は 580°C でアニールした試料表面の AFM 像である。高温でのアニールにより起こる Ga(As) と S の蒸発のために試料表面は荒れているが、AFM 像は基板のテラス構造を反映している。しかし、リング状

Fig. 8 AFM image of $(\text{NH}_4)_2\text{S}_x$ -treated GaAs Surface annealed at 580°C . Scanning area is $3.0 \times 3.0 \mu\text{m}^2$.

の S の残留物の周辺ではアニール後も荒れが少なく、また S の残留物が存在している。したがって、 580°C の高温アニールでも厚いリング状の S 残留物は完全に表面から脱離しないことがわかった。一方リング構造の内側とリング構造の間隔が広い領域では、GaAs が蒸発したことにより形成されたと考えられる、幅 40 nm、高さ 1 nm 程度の凹凸が観察され、これらの領域では S は完全に脱離していることがわかる。

したがって、S を用いたパッシベーション法で安定で再現性の良い効果を得るためには、今回用いたようなウェット処理法でなく、真空中で S 膜を形成するドライ処理法^{11,20)}を用いることが必要と考えられる。

5. 結 論

S 処理した MOCVD 成長 GaAs の表面構造を STM および AFM 観察により明らかにした。STM で 2×1 構造が観察された平坦領域では、GaAs 表面は Ga-S 結合で終端されており、S はダイヤモンドを形成していることが明らかとなった。STM 像から求められた S ダイヤ結合長さと $[100]$ 方向の Ga-S 間距離の表面構造定数は、これまでに報告されている理論計算から決定された値とよく一致していることがわかった。さらに S の多層構造も観察され、第 2 層目の S 層は $[110]$ と $[\bar{1}\bar{1}0]$ 方向に $2 \times$ 構造を示すが、第 3 層目は特別な表面構造は示さないことがわかった。

一方 AFM 観察からは、STM で 2×1 構造が観察された試料で GaAs 基板を反映した構造が観察され、均一な S 薄膜が広い領域で形成されていることがわかったが、試料乾燥時に形成されたと考えられるリング状の S 残留物が観察された。また、AFM 探針により S 膜を削り取ることができることを見出し、この手法を用いて

アニール後の試料表面は1～3層のSで覆われていることを明らかにした。さらに、厚いリング状のS残留物は580°C 程度の高温アニールでも完全には脱離しないことが明らかになった。このように、S処理したGaAs表面は510°C の高温アニールによっても単層のSだけでなく、多層のSで覆われていることが明らかとなった。

これらの結果から、安定で再現性の良いパッシベーション効果を得るためには、真空中でS膜を形成するドライ処理法を用いることが必要と考えられる。さらにパッシベーション技術を評価するために今後は表面構造の観察だけでなく、S層とGaAsの界面の電気的特性をナノメータレベルで測定可能な手法を確立することが重要であると考えられる。

謝 辞

S処理法をご教示いただいた間田洋一氏、実験結果についてご討論いただいた菅原裕彦氏、大野隆央氏、AFM装置を使用させていただいた山崎謙治氏、笹浦正弘氏に深謝いたします。また日頃ご指導いただいている水谷孝部長に感謝いたします。

文 献

- 1) J. R. Waldrop: J. Vac. Sci. & Technol. **B3**, 1197 (1985).
- 2) C. J. Sandroff, R. N. Nottenburg, J. C. Bischoff and R. Bhat: Appl. Phys. Lett. **51**, 33 (1987).
- 3) J. Fan, H. Oigawa and Y. Nannichi: Jpn. J. Appl. Phys. **27**, L1331 (1988).
- 4) C. J. Spindt, D. Liu, K. Miyano, P. L. Meissner, T. T. Chiang, T. Kendelewicz, I. Lindau and W. E. Spicer: Appl. Phys. Lett. **55**, 861 (1989).
- 5) J. Fan, H. Oigawa and Y. Nannichi: Jpn. J. Appl. Phys. **27**, L2125 (1988).
- 6) C. J. Sandroff, M. S. Hegde, L. A. Farrow, R. Bhat, J. P. Harbison and C. C. Chang: J. Appl. Phys. **67**, 586 (1990).
- 7) F. S. Turco, C. J. Sandroff, M. S. Hedge and M. C. Tamargo: J. Vac. Sci. Technol. B **8**, 856 (1990).
- 8) H. Oigawa, J. Fan, Y. Nannichi, H. Sugahara and M. Oshima: Jpn. J. Appl. Phys. **30**, L322 (1991).
- 9) H. Hirayama, Y. Matsumoto, H. Oigawa and Y. Nannichi: Appl. Phys. Lett. **54**, 2565 (1989).
- 10) H. Sugahara, M. Oshima, H. Oigawa, H. Shigekawa and Y. Nannichi: J. Appl. Phys. **69**, 4349 (1991).
- 11) J. Massies, F. Dezaly and N. T. Linh: J. Vac. Sci. Technol. **17**, 1134 (1980).
- 12) T. Ohno and K. Shiraishi: Phys. Rev. **B42**, 11194 (1991).
- 13) T. Ohno: Surf. Sci. **255**, 229 (1991).
- 14) 吉村雅満, 塩田 隆, 黒木昭彦, 荒 則彦, 影島賢己, 重川秀実, 大井川治宏, 南日康夫, 斉藤芳男, 河津 章: 表面科学 **11**, 35 (1990).
- 15) M. Katayama, M. Aono, H. Oigawa, Y. Nannichi, H. Sugahara and M. Oshima: Jpn. J. Appl. Phys. **30**, L786 (1991).
- 16) S. Gwo, K.-J. Zhao and C. K. Shih: Phys. Rev. Lett. **71**, 1883 (1993).
- 17) M. Katayama, M. Aono, H. Oigawa, Y. Nannichi, H. Sugahara and M. Oshima: Jpn. J. Appl. Phys. **30**, L786 (1991).
- 18) K. Ikuta, J. Osaka and H. Yokoyama: J. Cryst. Growth. **136**, 114 (1994).
- 19) M. Tanimoto, H. Yokoyama, M. Shinohara and N. Inoue: Jpn. J. Appl. Phys. **33**, L279 (1994).
- 20) H. Sugahara, M. Oshima, H. Oigawa and Y. Nannichi: Thin Solid Films **220**, 212 (1992).
- 21) H. Oigawa, J. Fan, Y. Nannichi, K. Ando, K. Sakaki and A. Koma: Jpn. J. Appl. Phys. **28**, L340 (1989).