GaAs 表面再構成構造とトリメチルガリウムの表面反応

佐々木 正 洋・吉田 清輝*

筑波大学理工工学系 ☎ 305 茨城県つくば市天王台 1-1-1
*古河電工横浜研究所 ☎ 220 神奈川県横浜市区岡野 2-4-3

(1997 年 1 月 6 日受理)

Trimethylgallium Surface Reaction as a Function of GaAs Reconstructed Structure

Masahiro SASAKI and Seikoh YOSHIDA*

Institute of Applied Physics, University of Tsukuba, 1-1-1 Tennoudai, Tsukuba, Ibaraki 305
*Yokohama R&D Laboratories, The Furukawa Electric Co., Ltd., 2-4-3 Okano, Nishi-ku, Yokohama, Kanagawa 220

(Received January 6, 1997)

The surface reaction of trimethylgallium (TMG) is discussed as a function of relaxed or reconstructed GaAs surface structure on the basis of pulsed molecular beam scatterings from stoichiometry controlled GaAs(100), (110) and (111)B surfaces. The results are interpreted within the framework of the precursor-mediated adsorption mechanism, where TMG surface reaction is determined by the depth of the precursor state and the stability of the surface structure. It is believed that the precursor state is deepened by the electrostatic behavior in the GaAs surface structure. The topmost As atoms which have only bonds to As atoms hinder TMG trapping in the precursor state; implying the mechanism of the growth suppression on the (2×2)-reconstructed (111)B surface and the As-passivation technique.

1. は じ め に

GaAs 表面は、面方位だけでなく、表面ストイキオメトリ (表面 As 被覆率) により様々な再構成構造 (surface reconstructed structure) をとることが知られている¹⁾。低速電子線回折 (LEED)、反射高速電子線回折 (RHEED)、光電子分光等を用いた分析、理論的検討、さらには、近年著しく発達した走査トンネル顕微鏡を用いた観察により、その原子配置、電子状態に関して多くのことが明らかになっている²⁾。これに対し、GaAs 表面上の表面反応に関しては、半導体製造プロセス制御において重要であるにもかかわらず、十分に理解されているとはいえない。本稿では、有機金属気相成長法 (MOVPE) あるいは有機金属分子線エピタキシャル成長法 (MOMBE) における代表的な原料ガスであるトリメチルガリウム (TMG) の表面反応、特に、その初期過程であるガスの吸着/脱離過程と GaAs 表面再構成構造の関係について議論する。

TMG 等の有機金属原料ガスの表面反応は表面状態により敏感に変化する。特に、気相反応のない MOMBE

成長では成長形態が大きく変化する。この表面反応を活用することにより、たとえば、選択成長^{3~5)}、単原子層成長^{6, 7)}、ラテラル成長⁸⁾等の成長制御が可能となっている。これらは、次世代の量子効果素子に不可欠な 3 次元ナノ構造形成の有力な手法になると考えられる。

これまで、種々の方法で、MOMBE あるいは MOVPE における表面反応が検討されたが^{9~13)}、その成長機構がそれほど単純ではないため、統一的に理解するには至っていない。そこで、より詳細な検討が求められている。

パルス状の分子線を試料表面に照射しながら散乱 (吸着/脱離) する分子を時間分解で観測することにより、反応における動的挙動を直接観測することができる¹⁴⁾。Yu らはこの手法により有機金属原料ガスの表面反応を分析したが、表面状態、表面構造に対応した現象は観測されなかった¹⁵⁾。我々は、エピタキシャル成長により注意深く制御した GaAs 表面を用い、改めて、パルス分子線散乱による検討を行った。その結果、実際の MOMBE の現象に対応した表面構造依存性を観測することが可能となった。

Fig. 1 Pulsed TMG beam-scattering chamber used in this study. We measure the time-of-arrival spectra of TMG scattered from GaAs surfaces prepared in the MOMBE facility.

2. 実験装置および実験方法

本研究では、MOMBE 成長室、パルス分子線散乱室、表面処理室から成るマルチチェンバー装置を用いた。

MOMBE 成長室では、エピタキシャル成長を行うための有機金属供給装置、固体原料セル等に加えて、基板表面からの脱離種を観測するための質量分析計を備えている¹²⁾。この質量分析計は液体窒素で冷却したシュラウドとアパーチャにより覆われており、基板表面から脱離し直接入射した化学種を効率よく検出することができる。MOMBE 成長室には、さらに、表面状態を実時間でモニタするための RHEED システム、表面ストイキオメトリを変化させるための金属 Ga セルを備えている。

パルス分子線散乱室 (Fig. 1) では、回転チョップと回転チョップに同期したパルスバルブによりパルス TMG 分子線を生成する^{16, 17)}。パルスバルブ先端のノズル径は 0.5 mm である。この分子線を 2 段の差動排気を介して GaAs 表面に照射し、表面で散乱した TMG 分子を質量分析計により時間分解で観測した。バックグラウンドを低減するためにこの質量分析計も液体窒素で冷却したシュラウドとアパーチャを備えている。本研究では TMG を希釈せずに使用した。TMG の圧力は、TMG 容器の温度を一定に保つことで 150 Torr に制御した。生成された TMG 分子線のパルス形状は、並進運動 (並進エネルギー 0.21 eV) を伴ったマクスウェル分布 (並進実効温度 80 K) に従う速度分布に対応したものであった。パルス TMG 分子線は基板に対し 17° の方向から照射し、鏡面反射の方向に散乱した TMG について、チョップ開を起点とした飛行時間スペクトル (到達時間ス

ペクトル) を測定した。

TMG の表面反応は表面状態に大変敏感である。各実験に先立ち、数百 Å の GaAs を MOMBE 法により成長させた。このようにして得た GaAs 清浄表面をもとに、エピタキシャル成長後の降温過程、As フラックスの制御、金属 Ga の堆積、真空中での昇温を組み合わせることにより表面 As 被覆率を制御し、様々な再構成構造を持つ GaAs 表面を得た。

3. TMG 分解率の表面ストイキオメトリ依存性

エピタキシャル成長において最も一般的に用いられている GaAs (100) 表面は、表面ストイキオメトリによって様々な再構成構造をとることが知られている。まず、TMG 連続分子線を用いて観測した TMG 分解の表面ストイキオメトリ依存性の結果について簡単に紹介する¹⁸⁾。

GaAs (100) 表面のうち明瞭な (2×4) の RHEED 像を示す表面は As 安定化面として知られており、エピタキシャル成長後の制御された降温過程で再現性良く形成できる。Deparis らが行った Ga 堆積による RHEED 像変化の系統的な観測によれば、この表面の As 被覆率は 0.75 である¹⁹⁾。我々は、この表面を基準とし、所定量の金属 Ga を堆積させることにより表面ストイキオメトリの制御された GaAs 表面を形成した。ここで、金属 Ga のフラックスは MBE 成長における RHEED 振動の周期から測定した。一方、(2×4) 表面より As 被覆率の高い面は、一定の手順で形成した c(4×4) 表面を基準とし、同じく金属 Ga を堆積させることにより形成した。c(4×4) 表面の表面ストイキオメトリは確立していない

が、(2×4) 表面を基準とした実験結果と比較することにより、これら表面のストイキオメトリを決定した。

我々は、このようにして形成したストイキオメトリの制御された GaAs(100) 表面に一定フラックスの TMG 連続分子線を照射し、表面で分解せずに脱離した TMG を質量分析計を用いて分析した。その結果、TMG の分解率は、ストイキオメトリ制御の基準とした As 被覆率 0.75 の (2×4) 表面で特異的に低く (5%)、他の表面では約 50% と高いことを見いだした。

これまで、単原子層成長や MOVPE の気相反応において、TMG の分解は As が多いほど促進されると考えられていた。しかし、ここで得られた結果は、表面反応において表面の As 量よりむしろ表面の構造が重要であることを示している。TMG の分解が特異的に抑制された表面は、再現性良く形成できることからわかるが、熱的に安定であると考えられる²⁰⁾。一般に、表面構造の安定性と化学的な不活性は必ずしも対応するものではないが、得られた結果は、安定な表面構造を有する表面で TMG の分解が抑制されることを示唆している。

4. GaAs(100) 表面での反応

我々は、前述の TMG 表面反応の機構を理解するため、パルス TMG 分子線を用いた検討を行った。ここでは、TMG の分解が特異的に抑制された GaAs(100)-(2×4) 表面 ($\theta_{As}=0.75$) と、TMG の分解率が高い c(4×4) 表

Fig. 2 The amount of TMG scattered without sticking from GaAs(100)-c(4×4), -(2×4) and -(1×6) surfaces as a function of TMG exposure at 546 K. The shaded area corresponds to the sticking of TMG.

面 ($\theta_{As}\sim 1.2$)、および (1×6) 表面 ($\theta_{As}\sim 0.2$) に対し、パルス TMG 分子線を照射し、表面で散乱した TMG 分子の飛行時間スペクトルを測定した¹⁷⁾。

飛行時間スペクトルを時間的に積分することにより、恒久的な付着をすることなく脱離した TMG の量を見積もることができる。Fig. 2 は、基板温度 546 K (273°C) において TMG の脱離量を TMG 照射量の関数として示したものである。この温度では TMG は継続的な分解を起こさず、TMG 照射を続けることにより TMG の付着は飽和する。TMG 脱離の角度分布が変化しないとする、飽和した TMG 脱離量との差 (図中の影の部分) が TMG の付着量に対応する。Fig. 2 より、清浄な c(4×4) 表面、(1×6) 表面では TMG の付着確率が著しく高く、(2×4) 表面では付着が抑制されていることがわかる。ここで、TMG の付着が飽和した c(4×4) 表面および (1×6) 表面を昇温しても TMG の脱離が観測されないことから、TMG は解離吸着したものと考えられる。(2×4) 表面で TMG の解離吸着が抑制されるという Fig. 2 の結果は、前節で示した TMG 分解率の As 被覆率依存性の結果に対応するものである。

Fig. 3 は、TMG 照射初期に得られた TMG の飛行時間

Fig. 3 Time-of-arrival spectra of TMG scattered from GaAs(100)-c(4×4), -(2×4) and -(1×6) surfaces at 546 K. The solid lines show the results of curve-fitting to the sum of the components for scattering with and without surface residence.

スペクトルである。得られたスペクトルには長い裾が観測される。この裾は、散乱における表面とのエネルギー授受だけでは説明することができず、表面滞在があったことを意味する。そこで、表面滞在を考慮した解析を行った。表面滞在がある場合、飛行時間スペクトルは入射 TMG の速度分布、表面滞在率、脱離 TMG の速度分布の重畳 (convolution) で表される。得られた飛行時間スペクトルが表面滞を伴って脱離する成分と表面滞を伴わずに脱離する成分との和になっているとし、最小二乗法による解析を行った。このとき、入射分子線の速度分布は直接観測したが、脱離 TMG の速度分布は表面滞を伴う成分においては完全な熱緩和があり、表面滞を伴わない成分においては熱緩和が部分的であると仮定した。

Fig. 3 中の実線は解析結果を示す。実線と観測したスペクトルが良い一致を示すことから、ここで行った仮定は妥当なものであると考えられる。この解析によれば、 (2×4) 表面では全体の 77% の TMG 分子は $895 \pm 36 \mu\text{s}$ の表面滞を伴った後に脱離していることがわかる。一方、 $c(4 \times 4)$ 表面および (1×6) 表面では表面滞在時間は同程度であるが、表面滞を伴った成分は少なく、付着確率が大きいことを示している。また、脱離 TMG の速度分布は、表面滞のない成分でも完全な熱緩和があったことを示唆するものであった。

ここで観測した長い表面滞在は深い前駆状態 (precursor state)^{15, 21)} の存在を意味する。我々は、得られた結果を前駆状態を伴った解離吸着のモデルで解釈する²²⁾。すなわち、TMG 分子は反応の初期段階で深い前駆状態に一旦捉えられとす。通常、深い前駆状態に捉えられた分子は効率良く化学吸着に至ることが多いが、 (2×4) 表面では付着 (解離吸着) することなくほとんど全て脱離した。これは前駆状態と化学吸着の間に高い障壁があるためであると解釈することができる。半導体表面は再構成構造を形成することにより安定化している。安定化した表面に分子が (解離) 化学吸着するためには、形成されている再構成構造を一旦壊す必要があると考えられる。そこで、高い障壁はこの再構成構造が壊しにくいこと、すなわち表面構造の安定性が高いことを意味すると解釈できる。

一方、 $c(4 \times 4)$ 、 (1×6) 表面の場合、飛行時間スペクトルに深い前駆状態に対応した大きな裾は観測されないが、 (2×4) 表面と同様の前駆状態が存在すると考えられる。ただし、TMG は一旦この前駆状態に捉えられるが、表面構造がそれほど安定でないために容易に解離吸着まで至ったと考えることができる。当然ながら、前駆状態に捉えられた TMG は脱離しないため飛行時間スペ

クトルには現れなかった。

5. GaAs(110), (111)B 表面での反応

GaAs(100) 表面における結果は TMG の反応において表面構造安定性の重要性を示すものであった。劈開面である GaAs(110) 表面は、構造緩和により安定な表面構造をとることが確立しているが^{23, 24)}、GaAs(110) 表面での反応を検討することにより、この解釈の検証を行う²⁵⁾。

(100) 表面の場合と同様、清浄な GaAs(110) 表面にパルス TMG 分子線を照射した時の散乱 TMG の飛行時間スペクトルを測定し、この表面でも $(100)-(2 \times 4)$ 表面と同様の結果を得た。すなわち、 218°C (491 K) において、約 65% の TMG 分子が 1.3 ms の表面滞を伴った後に脱離したが、TMG の付着はほとんどないことがわかった。このことから、表面構造の安定性により TMG の解離吸着が抑制され得ることが裏付けられた。

また、GaAs(111) B 表面は、(100) 表面と同様に表面ストイキオメトリによって様々の表面再構成構造をとることが知られている²⁶⁾。GaAs(111)B 表面で観測することにより、GaAs(100) 表面で観測された現象に一般性があるか検証する。

GaAs(111)B 表面は、ストイキオメトリックであれば $(\sqrt{19} \times \sqrt{19}) R 23.4^\circ$ の再構成構造をとり、As リッチになると (2×2) 、Ga リッチになると (1×1) の再構成構造をとる。 (2×2) 表面では著しく成長が抑制され²⁷⁾、これを活用することによりラテラル成長が実現している⁸⁾。また、 $(\sqrt{19} \times \sqrt{19})$ 表面に関しては十分な検討は行われていないが、As の昇温脱離スペクトル等から安定な表面構造を持つことが推定される²⁵⁾。

得られた飛行時間スペクトルの解析から、 $(\sqrt{19} \times \sqrt{19})$ 表面では約 50% の TMG 分子が 0.85 ms の表面滞を経ているが、TMG の恒久的な付着は観測されなかった。これは $(100)-(2 \times 4)$ 表面と同じ挙動である。また (1×1) 表面では高い確率で TMG が付着し、表面滞を伴う成分は現れなかった。 $(\sqrt{19} \times \sqrt{19})$ 表面、 (1×1) 表面における結果は、 $(\sqrt{19} \times \sqrt{19})$ 表面の安定性が高く、 (1×1) 表面の安定性が劣るとして、先の解釈がそのまま成り立つ。これに対し、 (2×2) 表面では、TMG は全く付着せず、表面滞を伴う成分も観測されなかった。すなわち、この表面では、TMG 分子は深い前駆状態に捕捉されることなくすべて脱離した。この表面で、前駆状態が観測されないことは、前駆状態の起源を議論する場合の重要な手がかりとなる。

6. 結果を理解するためのモデル

以上で述べたように, GaAs(100), (110), (111)B 表面上での TMG の散乱 (吸着/脱離) が表面構造によって異なることを見いだした。ここでは得られた実験結果に対し統一的な解釈を試みる²⁵⁾。

得られた結果は, GaAs(111)B-(2×2) 表面の場合を除き, GaAs 表面には深い前駆状態が存在することを示している。基板に照射された TMG 分子は, まず表面に衝突するが, その時に持っている運動エネルギーの一部を失うことになる。その時, 十分な量のエネルギーを失った分子は前駆状態に捉えられるが, そうでない分子は, そのまま脱離する。前者の分子は, 飛行時間スペクトルにおいて表面滞在を伴わない成分として観測されている。一方, 後者の TMG 分子は, 表面構造の安定性が高い場合に解離吸着に至らず脱離することになる。これが飛行時間スペクトルの長い裾として観測された。ここで, もし, 表面構造のそれほど安定でない場所が存在すると, 捉えられた TMG 分子は表面拡散によりその場所に到達し解離吸着する。これが成長に寄与することになる。

多くの場合, 前駆状態に捉えられた分子がそのまま解離吸着に至るため, 前駆状態の深さは飛行時間スペクトルに直接には反映されない。しかし, 安定な表面構造を有する GaAs 表面では, 前駆状態に捉えられた TMG が表面滞在を経た後脱離し, 前駆状態が表面滞在時間として観測される。この場合, 表面滞在時間の基板温度依存性から前駆状態の深さ (脱離の活性化エネルギー) を求めることができる (Fig. 4)。得られた結果は, (100)-(2×4) 表面で 0.85 ± 0.05 eV, (110) 表面で 0.38 ± 0.05 eV, (111)B-($\sqrt{19} \times \sqrt{19}$) 表面で 0.32 ± 0.05 eV であった²⁸⁾。

Fig. 4 Arrhenius plots of the reciprocal of the surface residence time of TMG during scattering from GaAs (100)-(2×4), (110) and (111)B-($\sqrt{19} \times \sqrt{19}$) surfaces.

次に GaAs 表面の前駆状態の起源について考察を加える。ここでは最も単純な静電的相互作用を検討する²⁵⁾。

(110) 表面は, バルクを切断しただけでは電気的に中性であるが, 実際には As が外側に Ga が内側に移動 (バックリング) しているため中性ではない (Fig. 5)^{23, 24)}。Ga ダングリングボンド準位のエネルギーが高く, As ダングリングボンド準位では低いため, 安定化した表面では, Ga ダングリングボンドの電子は完全に As ダングリングボンドに移っている。また, As-Ga の共有結合において電子は As : Ga = 1.50 : 0.50 に分配される²⁹⁾。これから, 各原子位置での電荷を見積もる。As 原子は, ダングリングボンドが満たされており (電荷: -2), Ga と 3 本の結合を持つ (電荷: -1.5×3)。これから, As 原子位置での電荷は -1.5 ($-2 - 1.5 \times 3 + 5$) となる。同様に, Ga 原子位置での電荷は, $+1.5$ となる。これから, 表面には強い電気双極子モーメントが生じることがわかる。このとき, TMG の電気双極子感受率 (polarizability) が $50 \text{ \AA}^3$ で, TMG が電気双極子から $3.8 \text{ \AA}$ まで近づけると仮定し, 表面の電気双極子モーメントの効果を積算することにより, 0.38 eV の束縛エネルギーが得られる。即ち, 観測された前駆状態は静電的な相互作用により説明し得ることがわかる。

また, 同様に見積もると, (100)-(2×4) 表面の場合, 最表面の As と次の層にある Ga においても, As-Ga 対当たり (110) 表面と同程度の双極子モーメントが生じる。ただし, この表面では, Fig. 6 に示すように, 最表

Fig. 5 Atomic structure of a relaxed GaAs(110) surface.

Fig. 6 Atomic structure of a (2×4)-reconstructed GaAs(100) surface.

Fig. 7 Atomic structure of a (2×2)-reconstructed GaAs(111) B surface.

面の二量体を形成している As 原子が 2 個ずつ隣接しており、この表面では電気双極子モーメントを生じる As-Ga 対の密度が高い。このことから、(100)-(2×4) 表面では 0.85 eV とさらに深い前駆状態が生じるものと考えられる。表面の As 二量体が 3 個ずつ並んだ (2×4) β 1 構造を想定すると、このモデルでは 3 個のうちの中側の二量体の中心で束縛エネルギーが高くなると予想される。Avery らの STM 観察によれば TMG はこの位置に分子状吸着しており³⁰⁾、ここで提案したモデルとは矛盾しない。

次に、深い前駆状態の観測されなかった (111)B-(2×2) 表面について検討する。この表面は、As 面の上に As の三量体が乗った構造をしている (Fig. 7)²⁶⁾。ここで、(100)-(2×4) 表面の場合と同様に、原子位置での電荷を見積もる。電子数評価モデル (electron counting model)³¹⁾によれば、最表面の As 原子のダングリングボンド準位は完全に満たされている。ただし、この表面では最表面の三量体を形成している As 原子は As 原子のみと結合している。As-As 結合の電子は等分されるので、最表面の As 原子位置での電荷を概算すると零になり強い静電力は生じない。2 層目以下では、原子間で電気双極子モーメントが生じるが、As 三量体の下地との距離、密度、大きさを考慮すると、TMG 分子は下地の双極子モーメントに近づくことができないことがわかる。すなわち、電気的に中性な As 三量体により阻まれるため、TMG は前駆状態に捉えられることなく脱離すると考えることができる。

TMG が高い確率で分解 (解離吸着) した (100)-c(4

×4) 表面³²⁾でも、最表面の As 二量体は As のみと結合をつくっており、最表面の As 二量体は電気的に中性であると考えられる。しかし、この表面の場合、As 二量体の密度が低く、TMG は容易に下地の電気双極子モーメントに近づくことができる。このため、TMG は前駆状態に捉えられ、さらに、表面構造がそれほど安定でないために、高い確率で解離吸着に至ったものと考えられる。ここで用いた (100)-c(4×4) 表面よりさらに As 被覆率を高めると付着確率が減少することを観測しており²⁵⁾、最表面の As 二量体が TMG の反応を抑制する効果があることを示している。このことは、GaAs 表面を大気から保護するためにしばしば用いられる As 不活性化技術³³⁾の機構を与えるものである。

7. ま と め

様々に再構成構造の異なる GaAs(100), (110), (111) B の各表面において TMG の表面反応を検討した。その結果、TMG 表面反応の初期過程である散乱 (吸着/脱離) 過程は、前駆解離を伴った解離吸着として理解できることを見いだした。ここでは表面に到達した TMG 分子は一旦前駆状態に捉えられる。ただし、前駆状態に捉えられた TMG 分子は、表面構造がそれほど安定でない場合には解離吸着し成長に寄与するものの、十分に安定である場合には解離吸着に至らず脱離する。また、この前駆状態は表面原子によって生じる静電的相互作用によるとして矛盾無く説明できると考えられる。さらに、As 面上に形成した As 二量体、As 三量体は TMG の付着を阻害することを見いだした。これにより、(111)B 表面を用いたラテラル成長、As 不活性化技術の機構を説明することができる。

謝 辞

本研究は光技術研究開発 (株) つくば研究所にて行ったものである。有益な議論をしていただいた林 厳雄元所長、片山良史前所長、山田千樫博士に感謝いたします。

文 献

- 1) たとえば W. Ranke and K. Jacobi: Prog. Surf. Sci. **10**, 1 (1981).
- 2) たとえば解説として A. Kahn: Surf. Sci. **299/300**, 469 (1994).
- 3) E. Tokumitsu, Y. Kudou, M. Konagai and K. Takahashi: J. Appl. Phys. **55**, 3163 (1983).
- 4) Y. Hiratani, Y. Ohki, Y. Sugimoto, K. Akita, M. Taneya and H. Hidaka: Jpn. J. Appl. Phys. **29**, L 1360 (1990).
- 5) S. Yoshida and M. Sasaki: Proc. 19th Int. Symp. GaAs

- and Related Compounds, Karuizawa, Japan, 1992, eds. T. Ikegami, H. Hasegawa and Y. Takeda, Inst. Phys. Conf. Ser. No.129 (1993) p. 49.
- 6) J. Nishizawa, T. Kurabayashi, H. Abe and A. Nozoe: *Surf. Sci.* **185**, 249 (1987).
 - 7) A. Watanabe, T. Isu, M. Hata, T. Kamijo and Y. Katayama: *Jpn. J. Appl. Phys.* **28**, L 1080 (1989).
 - 8) Y. Nomura, Y. Morishita, S. Goto and Y. Katayama: *J. Electron. Mater.* **23**, 97 (1994).
 - 9) D.E. Aspnes, I. Kamiya, H. Tanaka and R. Bhat: *J. Vac. Sci. Technol. B* **10**, 1725 (1992).
 - 10) N. Kobayashi and Y. Horikoshi: *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, L 319 (1991).
 - 11) D.W. Kisker, G.B. Stephensen, P.H. Fuoss, F.J. Lamelas, S. Brennan and P. Imperatori: *J. Cryst. Growth* **124**, 1 (1992).
 - 12) Y. Ohki, Y. Hiratani and M. Yamada: *Jpn. J. Appl. Phys.* **28**, L 1486 (1989).
 - 13) J.R. Creighton, K. Lykke, V.A. Shamamian and B.D. Kay: *Appl. Phys. Lett.* **57**, 279 (1990); J.R. Creighton: *Surf. Sci.* **234**, 287 (1990).
 - 14) 解説として G. Scoles: "Atomic and Molecular Beam Methods", vol. 2 (Oxford Univ. Press, New York, 1992).
 - 15) R. Souda and M.L. Yu: *Surf. Sci.* **280**, 115 (1993); M.L. Yu: *J. Appl. Phys.* **73**, 716 (1993).
 - 16) M. Sasaki and S. Yoshida: *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, L 884 (1994).
 - 17) M. Sasaki and S. Yoshida: *Surf. Sci.* **315**, L 964 (1994).
 - 18) M. Sasaki and S. Yoshida: *J. Vac. Sci. Technol. B* **10**, 1720 (1992).
 - 19) C. Deparis and J. Massies: *J. Cryst. Growth* **108**, 157 (1991).
 - 20) D. J. Chadi: *J. Vac. Sci. Technol. A* **5**, 834 (1987).
 - 21) たとえば A. Zangwill: "Physics at Surfaces" (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1988).
 - 22) M. Sasaki and S. Yoshida: *Jpn. J. Appl. Phys.* **34**, 1113 (1995).
 - 23) C.B. Duke: *J. Vac. Sci. Technol. A* **10**, 2032 (1992).
 - 24) R.M. Feenstra, J.A. Stroscio, J. Tersoff and A.P. Fein: *Phys. Rev. Lett.* **58**, 1192 (1987).
 - 25) M. Sasaki and S. Yoshida: *Surf. Sci.* **356**, 233 (1996).
 - 26) D.K. Biegelsen, R.D. Bringans, J.E. Northrup and L.-E. Swartz: *Phys. Rev. Lett.* **65**, 452 (1990).
 - 27) Y. Ohki, Y. Hiratani and M. Sasaki: *Appl. Phys. Lett.* **59**, 2538 (1991).
 - 28) M. Sasaki and S. Yoshida: *Surf. Sci.* **357/358**, 863 (1996).
 - 29) W.A. Harrison: *J. Vac. Sci. Technol.* **16**, 1492 (1979); W. A. Harrison: "Electronic Structure and the Properties of Solids" (W.H. Freeman and Company, San Francisco, 1980) p.68.
 - 30) A.R. Avery, A.J. Mayne, C.M. Goringe, J.H.G. Owen, C. W. Smith, M.O. Schweitzer, T.S. Jones, G.A.D. Briggs and W.H. Weinberg: *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **312**, 219 (1993).
 - 31) M.D. Pashley: *Phys. Rev. B* **40**, 10481 (1989).
 - 32) P.K. Larsen, J.H. Neave, J.F. van der Veen, P.J. Dobson and B.A. Joyce: *Phys. Rev. B* **27**, 4966 (1983).
 - 33) S.P. Kowalczyk, D.L. Miller, J.R. Waldrop, P.G. Newman and R.W. Grant: *J. Vac. Sci. Technol.* **19**, 255 (1981); D.L. Miller, R.T. Chen, K. Elliot and S.P. Kowalczyk: *J. Appl. Phys.* **57**, 1922 (1985).