

解 説 1

3.1, 3.3

RHEED 励起 X 線全反射角分光 (TRAXS) 法による表面の研究



井 野 正 三・大 門 寛
長 谷 川 修 司*・松 本 裕 敦

東京大学理学部物理学教室 ▼113 東京都文京区本郷 7-3-1

(1987 年 4 月 17 日 受理)

RHEED の電子線の励起により表面より放射される特性 X 線を検出する際に、X 線の取り出し角を X 線の全反射の臨界角にして測定すると、表面原子の検出感度が著しく増大する現象が見いだされた。この現象を利用すると表面原子の検出感度がきわめて高くなるので、表面の元素分析法として有効であるばかりでなく、表面の原子配列構造に関する情報も得られる。さらに、数原子層以上の厚い膜の研究や物質の界面の研究も行なうことができるので、この方法が大きく発展する可能性が生じている。

1. ま え が き

固体表面の数原子層の所に生ずる表面超構造の研究において、LEED (低速電子回折) はその誕生以来最も有力な方法として認識され、盛んに利用されてきた。一方、RHEED (反射高速電子回折) によっても表面構造の研究が可能であるという結果が報告されていたが^{1~4)}、LEED のように有効なものとは必ずしも認識されていなかった。しかしながら、平坦で清浄な表面にして、電子線の平行度を上げると非常に鮮明な表面構造の RHEED パターンが得られることが示されたり^{5, 6)}、また球面状の螢光板を用いて LEED と同様に逆格子ロッドのパターンを得る方法も開発されて^{5, 6)}、UHV-RHEED が表面構造の研究にきわめて有力な方法であることが示された^{5, 6)}。その後、Si や Ge の清浄表面の構造や、それらの表面に種々の

金属を吸着させたときに生ずる表面構造やその相転移、吸着、脱離、結晶成長の過程などの研究に盛んに利用され^{7~15)}、表面現象の研究が様変わりに精密かつ詳細になってきた。RHEED 自身については解説が幾つかあるので、それらを参照していただきたい^{16~20)}。

RHEED はその後表面研究に大きな刺激を与えた、幾つかの新しい方法を生み出すきっかけとなつた。まず本庄-八木のグループは、以前から UHV-TEM (透過型電子顕微鏡) を作製して、薄膜の結晶成長の研究を行なっていたが、RHEED の有効性に刺激され²¹⁾、REM (反射型電子顕微鏡) により、表面のステップ、格子欠陥、蒸着過程などの見事な観察を行ない、REM が表面研究に非常に有効であることを示した^{22~24)}。早川-市川のグループは、20 nm 程度の細い電子線を用いたマイクロ RHEED-SEM (走査型電子顕微鏡) を開発し、この方法が REM と同様に表面現象の研究に非常に有力であることを示した^{25~27)}。

GaAs のように原子レベルで層状に成長する場合には、RHEED の強度が振動することが見いだされ^{28~30)}、これを利用した 1 原子層レベルで制御する結晶成長技術が急速に発展し、新しい材料開発の道が開かれた。

Surface Study by RHEED-TRAXS: Shozo INO, Hiroshi DAIMON, Shuji HASEGAWA* and Hiroatsu MATSUMOTO. Department of Physics, Faculty of Science, University of Tokyo. Bunkyo-ku, Tokyo 113.

* 現在: 日立製作所基礎研究所 ▼185 国分寺市東恋ヶ窪 1-280

Present address: Advanced Research Laboratory, Hitachi Ltd. Kokubunji 185.

また RHEED の電子線励起によって生ずるオージェ電子を検出して表面の元素分析を行なうことや³¹⁾、RHEED 電子線の入射角を変えたときのオージェ電子の放出量の変動を測定し、表面の原子配列構造の解析をする方法も一宮らによって開発されている^{32,33)}。

RHEED の観察中にはオージェ電子のほかにも当然 X 線が放出され、これを検出して表面の元素分析を行なう研究が Sewell ら^{34~36)}によって行なわれたが、波長分散型の X 線分光器を用いたために、表面元素の検出感度は必ずしも十分なものとはいえないかった。著者らは UHV-RHEED 装置に半導体検出器 Si (Li) を取り付けた装置を作製し測定した結果、表面の元素分析の感度が数十分の一原子層にまで達し、表面の元素分析法として有効であることを示した³⁷⁾。さらにこの方法について電子線の視射角、方位角、加速エネルギー依存性や放出 X 線の取り出し角依存性などを詳しく調べているうちに、放出 X 線の表面に対する取り出し角を変えると X 線のスペクトルの形が著しく変化することを見いだした。この様子を詳しく調べた結果、X 線の取り出し角を、X 線の全反射の臨界角 θ_c の付近に設定すると、表面元素の検出感度が著しく増大する現象を見いだした^{38~40)}。これは新しい表面元素分析法であり³⁸⁾、この現象を利用する条件では、平均的には AES (オージェ電子分光) と同程度と見られるが、都合のよい条件では AES よりも感度が上がる。

本解説ではこの方法について、その原理、装置、Si(111) 上の Ag, Au, Ge などの成長や脱離過程の研究結果^{38~45)}を通してこの方法の特徴を述べ、応用研究や将来の展望も述べる。

2. RHEED 励起 X 線全反射角分光装置

図 1 は通常の UHV-RHEED 装置⁵⁾に、放射 X 線を検出するための Si (Li) 型 SSD (半導体検出器) を取り付けたものである^{37~41)}。RHEED 電子線によって励起された X 線は Be 箔 (直径 10 mm, 厚さ 25 μm) を通して大気中に取り出され、普通の状態で SSD で検出される。このように RHEED-TRAXS の実験においては X 線を一度大気中に取り出してしまうので、Be 窓の作製には

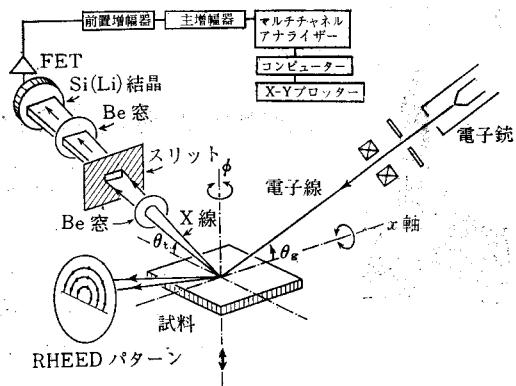


図 1 RHEED (反応高速電子回折)-TRAXS (X 線全反射角分光) 装置^{37~40)}。

多少の工夫がいるが、X 線の測定系はすべて大気中で操作できるのが大きな利点となっている。取り出し角の精度を上げるために SSD 検出器の前には結晶表面に平行な細いスリットが置かれており、取り出し角の幅は 0.08° である。X 線検出器の位置は、試料を中心に考える場合、RHEED 電子線に対して直角方向に置かれており³⁸⁾、表面に対する取り出し角 θ_t は、電子線に平行な回転軸のまわりに試料を正確に回転させることによって制御される。

Si の (111), (001) 表面の清浄化の方法は以前に確立した方法⁵⁾と同じである。すなわち、試料に直接通電して約 1000 °C に加熱すると SiC の微粒子が形成されるが、さらに 1250 °C に加熱すると SiC が消失して清浄になり、これを冷却すると 7 × 7 構造が現われる。以下に述べる結果はこの表面に Au, Ag, Sn, Ge, Ni などを蒸着し、RHEED で表面構造を観察しながら放出 X 線の測定を行なったものである。

3. 表面元素の特性 X 線の取り出し角依存性

図 2 は清浄な Si (111) 表面に Ag を 1 原子層 (0.12 nm) 吸着させた試料について、X 線の取り出し角 θ_t を変えたときの X 線スペクトルの変化の様子を、下地の SiK_α のピークの大きさを一定にして表示したものである^{38,39)}。取り出し角 θ_t を a, b, c, d と変えると、 $\text{AgL}_{\alpha\beta}$ のピーク (AgL_α と AgL_β の二つのピークからなるが、分解能が悪く分離していない) は a, b, c, d の

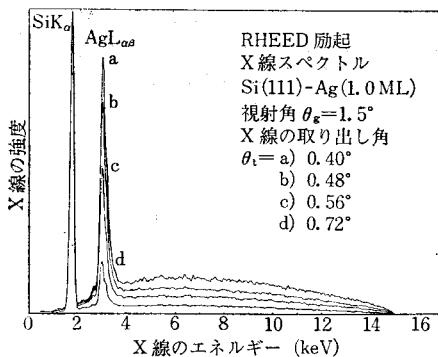


図 2 Si(111) 表面に Ag(1 原子層) を吸着させた試料からの X 線スペクトル。取り出し角を a, b, c, d と変えると $\text{AgL}_{\alpha\beta}$ 線のピークは a, b, c, d のように変化する^{38,39}。

ように変化する。図 3 は、 SiK_α および $\text{AgL}_{\alpha\beta}$ のピークの高さの θ_t 依存性を測定したものである。これを見ると、 θ_t が大きくなるとともに SiK_α はほぼ 1° 近くまで急激に増大し、それ以上の θ_t では増加がゆるやかになる。これに対して、 $\text{AgL}_{\alpha\beta}$ は θ_t が大きくなるとともに急激に増加して $\theta_t \approx 0.6^\circ$ 付近に鋭いピークを形成し、その後減少してほぼ一定になる。

SiK_α に対する $\text{AgL}_{\alpha\beta}$ の相対強度の変化を見るために、 $\text{AgL}_{\alpha\beta}/\text{SiK}_\alpha$ の値の θ_t 依存性を描いたものが図 4 である^{39,40}。これは 1 原子層の Ag の検出感度の取り出し角依存性に対応する。 $\theta_t \geq 1.0^\circ$ では Ag 原子の検出感度はあまりよくない

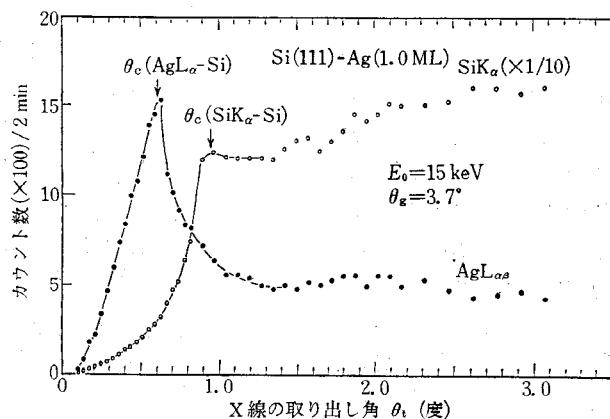


図 3 Si(111)-Ag(1 原子層) 表面から測定された SiK_α と $\text{AgL}_{\alpha\beta}$ の強度の取り出し角依存性^{39,40}。

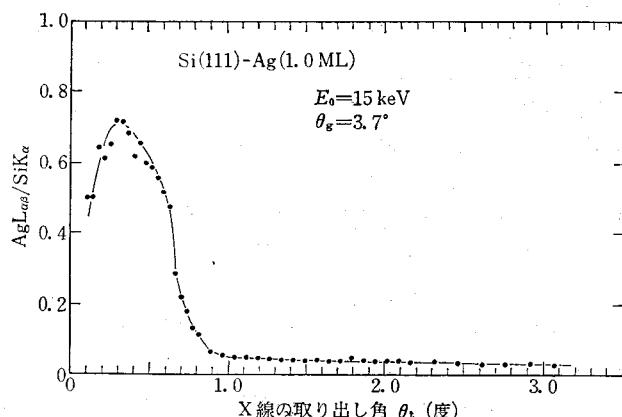


図 4 図 3 における二つのピーク比 $\text{AgL}_{\alpha\beta}/\text{SiK}_\alpha$ の取り出し角依存性^{39,40}。 $\theta_t > 1.0^\circ$ では表面の検出感度が低いが、 $\theta_t \approx \theta_c$ では非常に高くなる^{39,40}。

(これは以前の研究³⁷⁾の条件に対応している)が、 $\theta_t < 1.0^\circ$ では検出感度が著しく増大し、最高感度になる条件においては、わずか1原子層のAg原子からの $\text{AgL}_{\alpha\beta}$ のピークが下地の SiK_α と同程度の大きさに検出される。

SiやGeの(111)や(001)表面にAu, Ag, Sn, Ge, Niを吸着させた試料についても同様な結果が得られている^{38~45)}。

4. RHEED-TRAXS の原理

図2, 3, 4などの実験結果は、X線の全反射現象に関係している。X線が小さな視射角で平坦な物質の表面に入射したときに全反射を起こす臨界角 θ_c は

$$\theta_c = \sqrt{2(1-n)} = \sqrt{\frac{N}{\pi m} \frac{e\lambda}{c}} \quad (1)$$

と表わされる。ただし、nは屈折率、e, m, Nは電子の電荷、質量、有効な電子の密度、cは光速度である。(1)式を用いて AgL_α および SiK_α 線がSi表面で全反射を起す臨界角 θ_c (AgL_α -Si)および θ_c (SiK_α -Si)を計算するとそれぞれ 0.956° , 0.596° となり、図3に示すように、 $\text{AgL}_{\alpha\beta}$ のピークおよび SiK_α の屈折点にほぼ一致している。Si, Ge表面上にAu, Ag, Sn, Ge, Niを吸着させた試料についても同様に(1)式で計算した値と一致する^{38~45)}。このことから上記の実験結果は、X線の全反射現象に密接に関係していることがわかる。

次にX線の全反射現象を考慮して、図2, 3, 4の実験結果や表面検出感度が増大する効果についての定性的な説明を試みる。図5(a)はX線が表面に対して全反射の臨界角 θ_c に近い視射角 θ で入射したときの様子を示したものである。 $\theta = \theta_c$ の場合はX線は全反射をするが、 $\theta > \theta_c$ の場合はAのように、主に表面で屈折して $\overline{OA''}$ の方向に進むが、一部は反射して $\overline{OA'}$ の方向にも進む。AがC近くとA''はC''に近く、このことを念頭に置いて、(b)に示すように電子線が表面に入射して、 S_0 , S_1 , ... 点よりX線が発生し、このX線を測定する検出器Dが表面に対する全反射の臨界角 θ_c の方向に設置してある場合を考える。X線は S_0 点よりあらゆる方向に等方的に発生するが、そのうちで表面に平行な \overline{SO} 方向に発生し

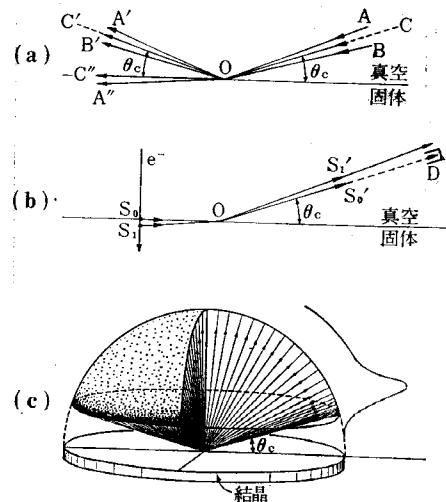


図5 X線の全反射現象とRHEED-TRAXSの原理の説明。(a) $\theta > \theta_c$ のとき、AO方向に入射したX線は、主にO点で屈折して $\overline{OA''}$ 方向に進むが、一部は反射して $\overline{OA'}$ 方向にも進む。 $\theta = \theta_c$ のときは大部分は $\overline{OC'C}$ と反射するが、一部は $\overline{OC''}$ 方向にも進む。 $\theta < \theta_c$ のときはBO方向に入射したX線は、大部分が $\overline{OB'}$ 方向に反射する。(b) 電子線励起によって S_0 より発生したX線が、表面にはほぼ平行に進む場合は、 $\overline{S_0OS_0'}$ と進行し、Dの検出器に入る。検出器を θ_c より少し大きな取り出し角の位置に置けば、 S_0 より少し上向きに発生したX線を検出する。またやや深い S_1 点より発生したX線も検出される。(c) 表面より等方的なフラックスをもって発生したX線が表面における屈折の効果によって変化する様子。右上には検出されるX線の極角依存性を示す。

たX線は、光線逆行の原理により、O点で屈折して臨界角 θ_c の $\overline{OS_0'}$ 方向に進み検出器Dに入る。

図5(c)は、表面付近より等方的に発生したX線が表面により屈折した後のX線の方向とフラックスの変化の様子を模式的に描いたものである。表面より下方に向かって発生したX線はそのまま等方的に進む。表面に平行な方向に発生したX線は、(b)のように、臨界角 θ_c の方向に進み、表面より少し上の方向に向かって発生したX線はAの方向に進み検出器Dには入らない。これは(b)において S_1 点より $\overline{S_1O}$ の方向に発生したX線がO点で屈折して \overline{OA} 方向に進む場合と同様である。

次にX線のフラックスの変化に注目すると、 S_0

点より表面に平行に発生したX線がO点で屈折して $\overline{OS_0'}$ 方向に進むので、 $\theta_t < \theta_c$ の方向にはX線が進行できない(吸収がある場合には一部は進行できる)ことになる。したがって、 θ_c またはこれより少し大きい取り出し角の方向ではX線のフラックスが大きくなり、検出されるX線の強度は図(c)の右上に描いたようになる。この強度分布が、定性的には図3における $\text{AgL}_{\alpha\beta}$ の取り出し角依存性に対応する。以上のことから整理すると、X線の取り出し角が全反射の臨界角 θ_c の方向になるような位置に検出器Dを置けば、表面付近から発生したX線のみを選択的に検出することになる。また取り出し角 θ_t を θ_c より少し大きくして $\overline{OS_1'}$ の方向になるように設定すれば少し深い所の S_1 から発生したX線を検出することになる。

以上のことから考慮すれば、この方法に対して「RHEED 励起X線全反射角分光」または省略して「RHEED-TRAXS (total reflection angle X-ray spectroscopy)」と呼ぶのが適当であろう。RHEED-TRAXSにおいて表面の検出感度が増大する原因としては、次の3点があげられる。

- (1) RHEED 条件では電子線が表面からあまり深く侵入せず、表面原子のX線の励起効率を上げる。
- (2) X線の全反射現象により表面原子からのX線を選択的に検出する。
- (3) 表面より深い所から発生したX線は、屈折と吸収の効果により、検出されない。

5. RHEED-TRAXS の特徴と応用

RHEED-TRAXS の特徴およびその応用については、表1にまとめられている。まず第一の特徴としては、RHEED で表面の構造を観察している場所を同時に元素分析しているという点である。これは構造的性質のよくわかった表面を分析できることを意味しているが、LEED-AES(オージェ電子分光)では必ずしも保証されていない。次に、AESの場合は大きなバックグラウンドの上に小さなAESピークが現われるので、スペクトルの微分形 $dN(E)/dE$ にして測定している場合が多いが、TRAXSでは、図2を見ればわかるように、わずか1原子層のAgによる特性X線

表1 RHEED-TRAXS の特徴と応用。

特徴

1. RHEED の観察地点の元素分析
2. ~0.01層~10,000層の元素分析
(吸着層、微粒子、厚膜の測定)
3. 吸着の形態によらず測定が可能
4. 検出層の深さの制御が可能

応用例

5. 吸着層の元素分析と原子配列構造の解析
吸着過程、脱離過程、吸着確率、吸着エネルギー、表面拡散速度、表面構造、被覆率、相転移……
6. 薄膜の元素分析と原子配列構造の解析
元素分析、結晶構造、微粒子構造、成長過程、アニールによる構造変化、合金化の過程……
7. 界面の元素分析と構造の解析
層状成長、MBE、析出物、結晶粒界……

$\text{AgL}_{\alpha\beta}$ が下地の SiK_{α} に匹敵するほど強く検出されており、バックグラウンドも少なく、S/Nで見ればAESより1桁程度も高いことがわかる。このように表面元素の検出感度では、平均的にはAESと同程度の場合もあるが、適切な条件を探せば、AESより高くなる場合が非常に多い。

また、結晶内部で発生したオージェ電子が真空中に放出されるまでの過程は、多重散乱や非弾性散乱などがあって複雑であるが、放射X線が検出器に入るまでの過程は単純であり、その定量的な分析においてもTRAXSは優れている。第三には、取り出し角 θ_t を変えることにより、検出部分の深さを変えることが可能であり、 θ_t を大きくすれば通常のXMAと同じになり、 μm 程度の深さに至るまでの場所の元素分析ができる。

図6は $\text{Si}(111)$ 上のAgの吸着過程をTRAXSで測定したものである。下地の温度 T_s が 480°C 以下の場合は、いずれの温度においても被覆率 θ が1原子層まではAgの吸着確率は1.0であるが、 θ が1.0を越えると吸着確率は温度によって大きく異なり、 $T_s=480^\circ\text{C}$ では吸着確率は0となる。 $T_s=440^\circ\text{C}$ のときはAgの吸着によって $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag構造ができ、余ったAgは微粒子状結晶に成長するStranski-Krastanov(SK)型の成長をする。SK型成長のようにAg微粒子が成長している場合には、AESではオージェ電子の平均自由行程が小さいので、微粒子からの信号が検出されず、図6(a)のような形として測定されてしまい⁴⁶⁾、Agが本当に吸着していないの

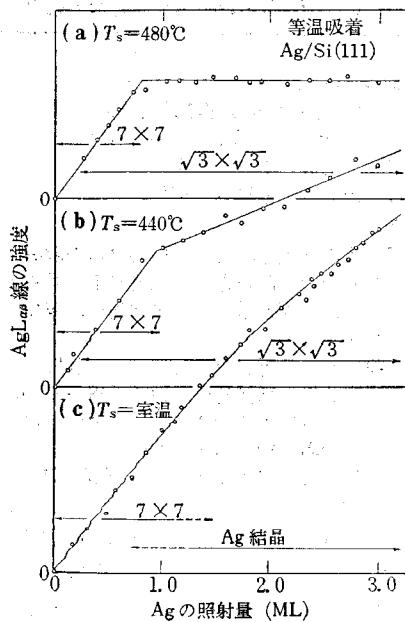


図 6 Si(111) 上の Ag の吸着過程の TRAXS 測定³⁹⁻⁴¹⁾。 (a), (b), (c) は下地の温度 T_s が 480°C, 440°C および室温において Ag を吸着させたときの $\text{AgL}_{\alpha\alpha}$ 線の増加の様子を示す。いずれの温度においても、被覆率 θ がほぼ 1 までは吸着確率はほぼ 1 であるが、 $\theta > 1.0$ になると、室温では 1 に近いが、440 °C では 1 より小さくなり、480°C では 0 となる。同様な測定を AES で行なうと、(b) の条件においても (a) のような測定結果が得られる⁴⁶⁾。

か、あるいは微粒子状に成長して検出されないのかの区別がつかない。しかしながら、TRAXS によれば、(b) に見られるように、照射量が 1.0 以上でも Ag が増加しており、X線の吸収を考慮して解析すれば微粒子状の成長の場合でも吸着確率が正確に求まる。

図 7 は Si(111) 表面に 3 原子層の Ag を蒸着し、その後高温に加熱した場合に、表面からの Ag の脱離の過程を RHEED-TRAXS で測定したものである。例えば $T_s=575^\circ\text{C}$ に加熱した場合は、Ag は直線的に減少するが、 $\theta=1.0, 2/3, 1/3$ に相当する X 線強度の点 B, C, D に屈折点ができる。加熱温度 T_s を変えると脱離の速度は変化するが、屈折点の位置は変わらない。この屈折点の位置は、RHEED で観察すると図に示すような表面構造の変化する点に対応することがわかる。この脱離速度の温度依存性を調べアレニウスの作図をすることにより、それぞれの表面構造に対する Ag の脱離エネルギーが容易に求まり、表 2 に載せたような結果となる^{39, 41)}。

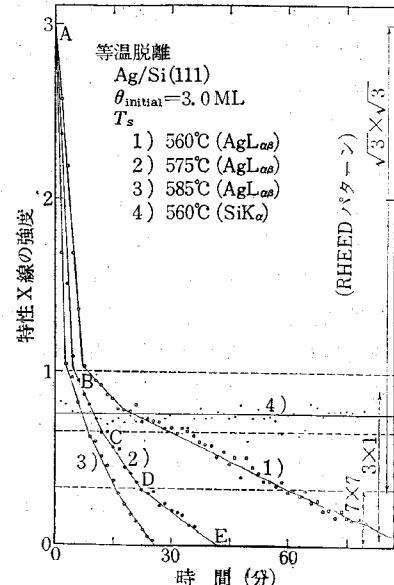


図 7 Si(111) 上の Ag の脱離過程の TRAXS 測定^{39, 41)}。

表 2 種々の表面構造の飽和被覆率と脱離エネルギー。

	LeLay ら	長谷川ら
実験方法	AES	RHEED-TRAXS
飽和被覆率	(ML)	(ML)
$\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造	2/3	1.0
3×1 構造	1/3	1/3
脱離エネルギー	(kcal/mol)	(kcal/mol)
三次元結晶	67	34 ± 2
$\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造	65	64 ± 2
3×1 構造	68	69 ± 1

スの作図をすることにより、それぞれの表面構造に対する Ag の脱離エネルギーが容易に求まり、表 2 に載せたような結果となる^{39, 41)}。

$\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag, 3×1 -Ag 構造からの脱離エネルギーは LeLay ら⁴⁶⁾の AES による結果とはほぼ一致しているが、微粒子のある表面からの脱離エネルギーについては、TRAXS のデータは AES のそれに比べると半分程度であり、大幅に食い違っている^{39, 41)}。TRAXS によれば図 7 に示すように、SK 型における脱離エネルギーは、 \overline{AB} の勾配の測定から直接的に求まり、これが他の表面構造より小さいことは明瞭である。AES の測定では、微粒子状態の Ag の検出が困難であり、 \overline{AB}

間の時間の測定により求めているので誤差を伴いやすい。このように、TRAXSによれば、微粒子が存在しても全体の吸着量が測定できるという利点があり、多くの有効な利用が期待できる。

次に、比較的層状に成長する系である Si(111)-Geについて、その吸着や成長の過程、アニールによる構造の変化や合金化の過程の研究例を紹介しよう。図8は Si(111) 上に Ge を 1 原子層吸着させた試料についての X 線の取り出し角依存性を求めたものである⁴⁴⁾。これは図3に対応するものであり、SiK_α の曲線は図3と同様であるが、GeK_α の曲線のピークの位置は図3とは異なり、GeK_α 線が Si 表面によって全反射する角 θ_c (GeK_α-Si) の計算値に一致している。

Si(111) 上に Ge を 30 層吸着させた試料では、図9に示すようになる⁴⁴⁾。すなわち、GeK_α

線の曲線はピークの位置が大きい角度のほうに少しづれるが、これは GeK_α 線が吸着した Ge 層を感じて全反射を起こすようになったからである。また、ピークの幅が広がっているのは、成長した Ge 膜の表面があまり平坦ではないためであると考えられる。一方、下地の SiK_α 線は取り出し角 $\theta_t = 0.75^\circ$ までは全く検出されず、これ以上になり初めて検出されるようになる。このような下地からの特性 X 線が検出され始める臨界角を α_c とする。 $\theta > \alpha_c$ では、 θ の増加とともに下地の SiK_α も単調に増加する。Ge の膜厚が増加すると α_c も増加するので、 α_c を測定すれば Ge の膜厚を知ることができる⁴⁴⁾。

次にこの試料を 400°C に加熱すると、図9は次のように変化した。すなわち、GeK_α の曲線のピークが鋭くなったが、これは Ge の膜が加熱によって均一化し平坦になったためと解釈される。また SiK_α 曲線における α_c 点は右にずれ、 $\alpha_c \approx 0.9^\circ$ となったが、この現象も加熱によって Ge 膜が均一化し、Si と Ge の界面が急峻になったためと推定される。これらの事実から、400°C のアニールでは、Si と Ge はまだ合金化は始まっていないと考えられる⁴⁴⁾。

この試料をさらに 600°C に加熱すると、GeK_α 曲線は 400°C の場合と同じで変化しないが、 α_c 点が逆に左へ移動し $\alpha_c = 0.65^\circ$ となる⁴⁴⁾。この現象はまさに Si と Ge が界面で合金化が起こり、界面の組成が変化して急峻ではなくなったためであると解釈される。以上のことから、400°C のアニールでは合金化は起こらず Ge の膜は均一化して平坦になり、600°C では界面で合金化が起こると推定される。このように TRAXS によればやや厚い膜であっても、その組成、成長様式、構造、平坦性や界面の合金化、構造などを研究することができる^{44,45)}。

6. む す び

以上ごく断片的な説明ではあったが、TRAXS の大ざっぱな特徴については、おわかりいただけたと思う。この特徴を生かすと、表1に載せたようなさまざまな応用的な研究ができる。特に、図2に見られるように、表面原子の検出感度が非常に高いので、このピークが、電子線の加速エネルギー

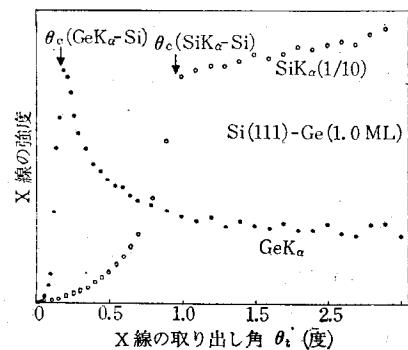


図8 Si(111)-Ge (1原子層) 表面から測定された SiK_α と GeK_α の強度の取り出し角依存性^{44,45)}。

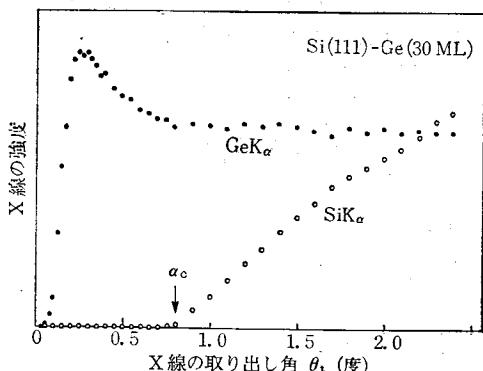


図9 Si(111)-Ge (30原子層) 表面から測定された SiK_α と GeK_α の強度の取り出し角依存性^{44,45)}。 α_c は、下地からの特性 X 線が検出され始める臨界角。

ギー、入射角、X線の取り出し角、方位角などを変えたときに、どのように変動するかを詳しく調べると、表面の原子配列構造に関する研究も可能であることがわかつた⁴⁵⁾。しかし、個々の点については紙数の都合上省略する。著者らはこれらの研究に対して文部省の特別推進研究として援助をしていただいて、目下研究を推進させていいる⁴⁵⁾。本解説はその一部を紹介したものであり、その他成果についても近いうちに報告する予定である。

文献

- 1) L. Trepte, C. Menzel-Kopp and E. Menzel: *Surf. Sci.* **8** (1967) 223.
- 2) P. E. Sewell, M. Cohen and D. F. Mitchel: *Surfaces and Interfaces I, Chemical and Physical Characteristics*, ed. J. J. Burke *et al.* (Syracuse University Press, 1967) p. 53.
- 3) A. J. Cho: *J. Appl. Phys.* **42** (1971) 2074.
- 4) J. F. Menadue: *Acta Crystallogr. A* **28** (1972) 1.
- 5) S. Ino: *Jpn. J. Appl. Phys.* **16** (1977) 891, *ibid.* **17** (1978) 1121.
- 6) S. Ino and Y. Gotoh: *Jpn. J. Appl. Phys.* **16** (1977) 2261.
- 7) T. Ichikawa and S. Ino: *Suppl. Sci. Rep. RITU A* **27** (1978) 37, *ibid. Jpn. J. Appl. Phys.* **17** (1978) 1675, *ibid. Solid State Commun.* **27** (1978) 483, *ibid. 34 (1980) 349, *ibid. Surf. Sci.* **85** (1979) 221, *ibid.* **97** (1980) 489, *ibid.* **105** (1981) 395, *ibid.* **136** (1984) 267.*
- 8) Y. Gotoh and S. Ino: *Jpn. J. Appl. Phys.* **17** (1978) 2097, *ibid. Thin Solid Films* **109** (1983) 255.
- 9) T. Aiyama and S. Ino: *Surf. Sci.* **82** (1979) L 585.
- 10) S. Ino: *Jpn. J. Appl. Phys.* **19** (1980) L 61, *ibid.* **19** (1980) 1277.
- 11) T. Ichikawa: *Surf. Sci.* **111** (1981) 227.
- 12) Y. Gotoh, S. Ino and H. Komatsu: *J. Cryst. Growth* **56** (1982) 498.
- 13) S. Ino, H. Daimon and T. Hanada: *J. Phys. Soc. Jpn.* **53** (1984) 1911.
- 14) H. Daimon and S. Ino: *Surf. Sci.* **164** (1985) 320.
- 15) Y. Yamamoto, S. Ino and T. Ichikawa: *Jpn. J. Appl. Phys.* **25** (1986) L 331.
- 16) 井野正三: *固体物理* **12** (1977) 349.
- 17) 井野正三: *日本結晶学会誌* **20** (1978) 64, *ibid.* **23** (1981) 197, *ibid.* **24** (1983) 390.
- 18) 井野正三: *日本物理学会誌* **33** (1978) 851, *ibid.* **37** (1982) 82.
- 19) 後藤芳彦, 井野正三: *固体物理* **18** (1983) 121.
- 20) 井野正三: *科学* **56** (1986) 30.
- 21) 本庄五郎: 本庄五郎教授退官記念講演“電子線回折 30 余年の回顧”(1979) p. 32.
- 22) N. Osakabe, Y. Tanisiro, K. Yagi and G. Honjo: *Surf. Sci.* **97** (1980) 393, *ibid.* **102** (1981) 424, *ibid.* **109** (1981) 353.
- 23) K. Yagi, K. Takayanagi and G. Honjo: *Crystals, Growth, Properties and Applications 7* (Springer Verlag, Berlin, 1982) p. 48.
- 24) K. Yagi: *J. Appl. Crystallogr.* **20** (1987) 印刷中.
- 25) M. Ichikawa and K. Hayakawa: *Jpn. J. Appl. Phys.* **21** (1982) 145, *ibid.* **21** (1982) 154.
- 26) M. Ichikawa, T. Doi, M. Ichihashi and K. Hayakawa: *Jpn. J. Appl. Phys.* **23** (1984) 913.
- 27) M. Ichikawa, T. Doi and K. Hayakawa: *Surf. Sci.* **159** (1985) 133.
- 28) J. J. Harris and B. A. Joyce: *Surf. Sci.* **108** (1981) L 90.
- 29) J. H. Neave, B. A. Joyce, P. J. Dobson and N. Norton: *Appl. Phys. A* **31** (1983) 1.
- 30) J. A. Van Hove, C. S. Lent, P. R. Pukite and P. I. Cohen: *J. Vac. Sci. & Technol. B* **1** (1983) 741.
- 31) T. Narusawa, S. Simizu and S. Komiya: *Jpn. J. Appl. Phys.* **17** (1978) 721.
- 32) A. Ichimiya and Y. Takeuchi: *Surf. Sci.* **128** (1983) 343.
- 33) Y. Horio and A. Ichimiya: *Surf. Sci.* **164** (1985) 589.
- 34) P. B. Sewell and M. Cohen: *Appl. Phys. Lett.* **11** (1967) 298.
- 35) P. B. Sewell and D. F. Mitchell: *J. Appl. Phys.* **42** (1971) 5879, *ibid. Surf. Sci.* **55** (1976) 367.
- 36) D. F. Mitchell, P. B. Sewell and M. Cohen: *Surf. Sci.* **61** (1976) 355, *ibid.* **69** (1977) 310.
- 37) S. Ino, T. Ichikawa and S. Okada: *Jpn. J. Appl. Phys.* **19** (1980) 1451.
- 38) 井野正三, 大門 寛, 山本陽一, 長谷川修司, 花田 貴: 特許出願(1983年10月13日).
- 39) 長谷川修司: 東京大学大学院物理学専攻修士論文(1985年3月).
- 40) S. Hasegawa, S. Ino, Y. Yamamoto and H. Daimon: *Jpn. J. Appl. Phys.* **24** (1985) L 387.
- 41) S. Hasegawa, H. Daimon and S. Ino: *Surf. Sci.* 印刷中.
- 42) 山本陽一: 東北大学大学院物理学専攻博士論文(1986年4月).
- 43) 井野正三: 日本結晶学会誌 **29** (1987) 印刷中.
- 44) 松本裕敦: 東京大学大学院物理学専攻修士論文(1987年3月).
- 45) 井野正三, 大門 寛: 昭和 61 年度特別推進研究進歩状況報告書(1986年10月).
- 46) G. LeLay, M. Manneville and R. Kern: *Surf. Sci.* **72** (1978) 405.