

# 表面上の2次元吸着原子ガス相と 内殻光電子分光<sup>†</sup>

上野将司・松田 巖・劉 燦華・原沢あゆみ\*

奥田太一\*・木下豊彦\*・長谷川修司

東京大学大学院理学系研究科物理学専攻 ☎ 113 0033 東京都文京区本郷 7 3 1

\*東京大学物性研究所軌道放射物性研究施設 ☎ 277 8581 千葉県柏市柏の葉 5 1 5

(2003年3月3日受付; 2003年6月25日掲載決定)

## Two-Dimensional Surface Adatom of Gas Phase and Core-Level Photoemission Spectroscopy

Masashi UENO, Iwao MATSUDA, Canhua LIU, Ayumi HARASAWA\*,

Taichi OKUDA\*, Toyohiko KINOSHITA\* and Shuji HASEGAWA

Department of Physics, School of Science, University of Tokyo,

7 3 1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113 0033

\*Synchrotron Radiation Laboratory, The Institute for Solid State Physics, University of Tokyo,

5 1 5 Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba 277 8581

(Received March 3, 2003; Accepted June 25, 2003)

Si(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag surfaces, prepared under various annealing conditions, was systematically investigated by scanning tunneling microscopy (STM) and reflection-high-energy electron diffraction (RHEED). Although the RHEED patterns were seemingly the same for all cases, the STM images showed clear difference in surface morphology and local structures at steps; step edges were roundish and decorated by random adsorption of clusters when annealed below 600 K. However, the steps were straight with periodic protrusions along them by higher-temperature and prolonged annealing, due to a formation of very narrow domains of  $6 \times 1$ -Ag structure at step edges. Such distinctions may be the origin for different results in core-level photoemission spectroscopy (CLPES). Since it is known that two-dimensional adatom gas (2 DAG) phase of excess Ag atoms exists on terraces, which changes the band bending in the substrate, the step edges (and clusters adsorbed there) may play as reservoirs of the 2 DAG. For the samples without sufficient annealing, the concentration of 2 DAG and the resulting band bending are inhomogeneous over the sample surfaces, which make the CLPES spectra broaden. Sufficient annealing removes the reservoirs and 2 DAG, resulting in a homogeneous band bending over the surfaces to get very sharp CLPES spectra.

## 1. はじめに

半導体表面上に金属が吸着して形成される表面超構造は、ナノメートル程度の低次元物理を研究するための重要な舞台となっている。吸着子と半導体基板との様々な組

み合わせによって多様な表面秩序相が形成され、新しい興味深い物理的性質が報告されている。それは、超高分解能の電子分光法や顕微鏡法などの実験技術の著しい進歩に負うところが大きい。しかし、原子尺度での超精密測定が可能になったがゆえに、逆に、試料作成の微妙な違いによって実験結果に差が生じ、研究者間で論争となる場合がある。Si(111)表面上に1原子層のAgを吸着させて形成されるSi(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag表面におけるSi

<sup>†</sup> 第22回表面科学講演大会(2002年11月26日~11月28日)にて発表

E-mail: ueno@surface.phys.s.u-tokyo.ac.jp

原子からの 2*p* 内殻光電子分光 (Core-Level PhotoEmission Spectroscopy, CLPES) の測定結果がその一例である。

CLPES は、特定の化学種周辺の局所的な原子配列を解析できる極めて強力な実験手法の 1 つである。しかし、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面について、原子配列構造が同じはずであるにもかかわらず、4 つのグループから報告されている CLPES の結果は異なっている<sup>1-4)</sup>。そのうちの 1 つでは、エネルギー位置がバルク成分からシフトした表面成分を明瞭に分解して検出しているが<sup>3)</sup>、他の 3 つでは、表面成分のエネルギーシフト量が連続的に分布して、その結果スペクトルがボケてしまっている。これは電子分析器のエネルギー分解能の違いによるものではないので、試料の作成条件の違いがスペクトルの差を生み出しているのではないかと考えられる。Ref. 3) の報告から、1.8 原子層 (monolayer, ML) および 1.2 ML の Ag を蒸着後、540 °C で加熱して作成した  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 構造の Si 2*p* CLPES はボケているが、この表面に 600 °C の高温加熱を行うとスペクトルが顕著に鋭くなり、複数のピーク成分が存在することが明瞭にわかる。電子回折図形では、これらの試料の間で違いが見られなかった。そこで、このスペクトルの違いが何に起因しているのか、という素朴な疑問から本研究を始めた。この問題は些細なことのように思えるかもしれないが、CLPES 測定において今まで認識されていない重要な因子がスペクトル形状に影響している可能性もあると考えられる。また、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面は、古くから様々な実験や理論的手法の練習問題として広く研究されてきた最も典型的な系であるので、この CLPES の問題は極めて重大であると認識している<sup>5-7)</sup>。

一方、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面上には、余剰 Ag 原子が作る極めて希薄な 2 次元吸着原子ガス (two-dimensional adatom gas, 2 DAG) が存在することが知られている<sup>5, 8)</sup>。このガス状の Ag 原子は、室温では高い移動度で表面上を動き回っているため、STM で直接観察できないが、低温に冷却すると Ag 原子が「凍結」されて STM で捉えられる<sup>9)</sup>。室温で観察すると、2 DAG の Ag 原子は特徴的なノイズとして観察されるだけで、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 基板表面の規則格子しか見えない。

一方、2 DAG 相の Ag 原子はその価電子を基板の表面状態に供与してドナーとして働く<sup>8)</sup>。その結果、表面状態を通る電気伝導度を増大させ、同時に表面直下でのバルク状態バンドを湾曲させることが光電子分光法および電気伝導度の測定によって明らかにされている<sup>5, 8)</sup>。この 2 DAG は一定濃度以上になると 3 次元核を形成して凝集する。3 次元核は 2 DAG のリザーバー (粒子源) として働き、Ag 原子が 3 次元核からの吸脱着を繰り返

して、2 DAG と 3 次元核が熱平衡状態となる。2 DAG の濃度は 3 次元核の性質や数密度、温度などによって決まるので、試料作成条件の微妙な差によって異なると考えられる。上述の CLPES 実験結果の差異は、この 2 DAG に起因するのではないかと予想をたてた。

そこで本研究では、この  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面構造を作成する際の熱処理条件を変えて、STM と RHEED および CLPES を用いて系統的に観測し、その結果をもとに CLPES での微妙な差異の原因を議論する。

## 2. 実験

STM の実験は、RHEED を備えた超高真空 STM (UNISOKU USM-802 type) を使って行った。真空槽内の背景圧力は  $5.5 \times 10^{-11}$  [Torr] であった。Si ウエハは、大きさが  $2 \times 15 \times 0.5$  [mm<sup>3</sup>] で、室温で抵抗率が 2 ~ 15 [Ωcm] の *n* タイプ (P ドープ) であった。CLPES の実験は KEK-フotonファクトリーにある Beam Line-18 A で行った。Si ウエハは、大きさが  $2 \times 13 \times 0.5$  [mm<sup>3</sup>] で、室温で抵抗率が 1 ~ 10 [Ωcm] の *p* タイプ (B ドープ) であった。ウエハに直流電流を流して 1250 °C までのフラッシュ加熱を数回繰り返して、7 × 7 構造の RHEED パターンと STM 像を得た。試料の温度は色温度計 (CHINO pyrostar model IR-U) で測定した。Ag の蒸着にはアルミナ被覆タングステンバスケットを使った。Ag の蒸着量は、RHEED と STM のその場観測により、表面全体が 7 × 7 から  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$  に完全に変化するために必要な Ag を 1 ML と定義し、これを基準にして、蒸発率が一定として蒸着持続時間から見積もった。Ag の蒸発率は ~ 1 [ML/分] である。

本研究では、Ref. 3) に示した Si 2*p* CLPES スペクトルの研究に基づいて  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 構造を作成した。表面の作成と後熱処理の過程は Fig. 1 に示す通りである。まず、1.2 ML の Ag を 7 × 7 の清浄表面に 520 °C で蒸着し (Process 1)、RHEED パターンを 7 × 7 から  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$  に完全に変化させた。続いて、試料を 540 °C で 2 分間熱処理し (Process 2)、さらに 600 °C で 15 秒間 (Process 3)、30 秒間 (Process 4)、60 秒間 (Process 5)、90 秒間 (Process 6)、120 秒間 (Process 7) 加熱した。各段階で、試料

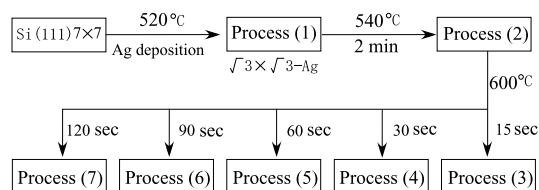


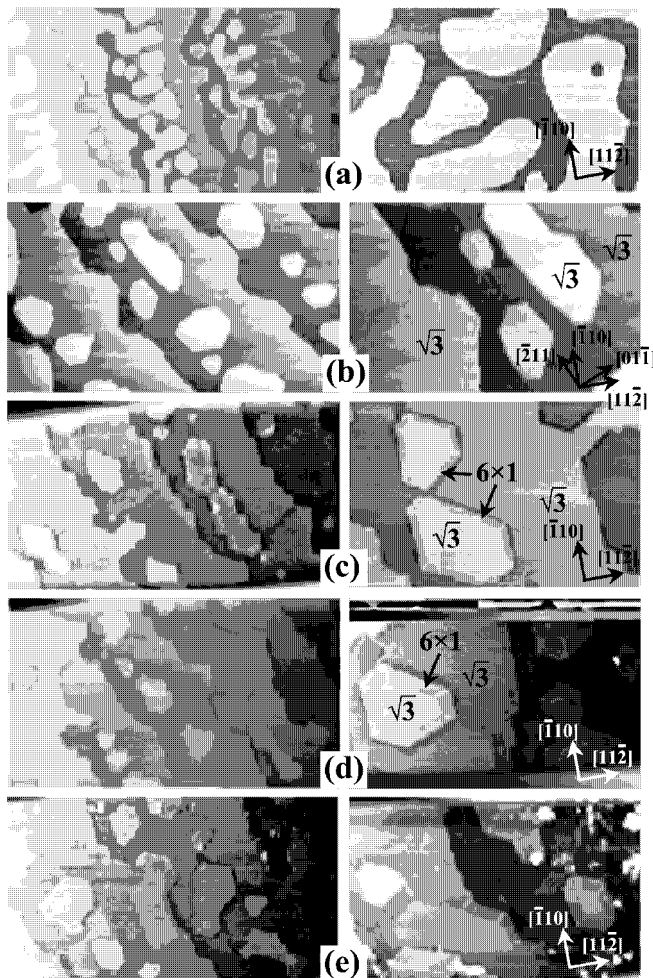
Fig. 1 Sample preparation procedures.

を室温まで冷ました後に STM で観測した。CLPES の実験は Fig. 1 の Process 1 と Process 3, そして Process 3 の表面に Ag を 520 Å で 0.1 ML だけ追加蒸着した過程で測定を行った。

### 3. 結 果

Fig. 2 は, Fig. 1 で示した各段階で見られた典型的な STM 像である。左の列は広範囲の像, 右の列は狭い範囲の像である。試料表面の典型的なテラス幅は  $\sim 300$  nm であった。Fig. 2 (a) に示すように Process 1 では, すでに表面全体が  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 構造に覆われていて,  $7 \times 7$  ドメインは残存していない。その表面のテラス上には,

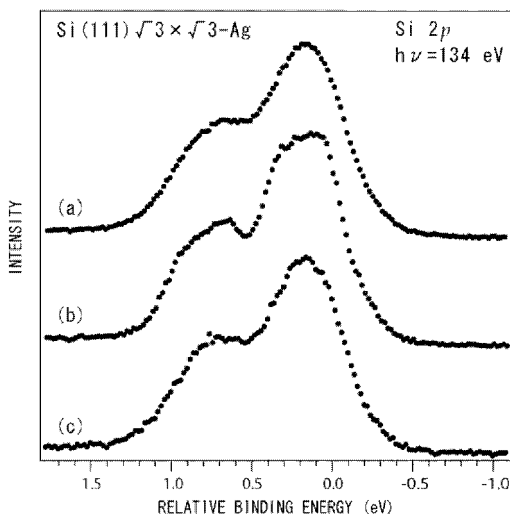
いろいろな形や大きさの  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag の 2 次元アイランドが多数存在する。テラスだけでなくアイランドのステップは曲線的である。Fig. 2 (a) は, 他の報告にあるように<sup>10)</sup>, 450 Å で 1 ML の Ag を蒸着してできた  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面の STM 像と非常によく似ている。Process 2 では, 2 次元アイランドは角の丸い六角形に近い形になり, ステップは  $10\bar{1}$  方向に揃う傾向がある。この傾向は Fig. 2 (b) で示した Process 3 でさらに強くなる。この特徴は, Process 5 (Fig. 2 (c)) まで大きく変わらない。しかし, Fig. 2 (c) のステップ端にやや暗く細長いドメインが現れていることに気づく。過去の報告によると<sup>11-13)</sup>, このドメインは Ag 吸着量が  $1/3$  ML の  $S\sqrt{3} \times \sqrt{3}$



**Fig. 2** Filled-state STM images of the  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag surface, recorded in constant-current mode with a bias voltage of 1.99 V. The images in left column are  $553 \times 1193$  nm<sup>2</sup> in size, and the right ones are  $378 \times 592$  nm<sup>2</sup>. (a) at Process 1, (b) at Process 3, (c) at Process 5, (d) at Process 6, and (e) at Process 7.

$6 \times 1$ -Ag (あるいは  $3 \times 1$ ) 表面超構造である。これは熱処理中に Ag 原子が部分的に脱離して構造変化した結果である<sup>14)</sup>。さらに熱処理すると (Process 6), Fig. 2 (d) のように  $6 \times 1$ -Ag ドメインが成長し, 逆に  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag ドメインが縮小する。この段階での RHEED パターンは,  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$  のスポットとともに弱い  $6 \times 1$  のスポットが共存しはじめた。最終的に Process 7 では, Fig. 2 (e) のように  $6 \times 1$ -Ag ドメインが全表面の約半分を占めている。この段階での RHEED パターンは,  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$  と  $6 \times 1$  の両方のスポットがはっきりと観察された。600 ~ 650 °C で  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面を熱処理して作成した  $6 \times 1$ -Ag 表面の過去の STM 観測では<sup>10, 11)</sup>,  $6 \times 1$ -Ag ドメインに囲まれて直線的なステップ端をもつ  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag ドメインが報告されている。私たちの結果はそれと一致している。

以上の一連の STM 観察から,  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面を熱処理することでステップの形が著しく変化することが明らかとなった。つまり, ステップは曲線的から直線的に変化した。これは, 非常に幅の狭い  $6 \times 1$ -Ag ドメインがステップ端に形成されることに関連している。Fig. 3 は (a) Process 1 と (b) Process 3, そして (c) Process 3 の表面に再び 520 °C で 0.1 ML だけ Ag を追加蒸着した表面の CLPES の結果である。Fig. 3 (a) と (c) のスペクトルはよく似た特徴を持っていて, 2 つのピーク成分が存在することがすぐに気づく。また, Fig. 3 (b) のスペクトルは Fig. 3 (a) と (c) のスペクトルよりも鋭く,



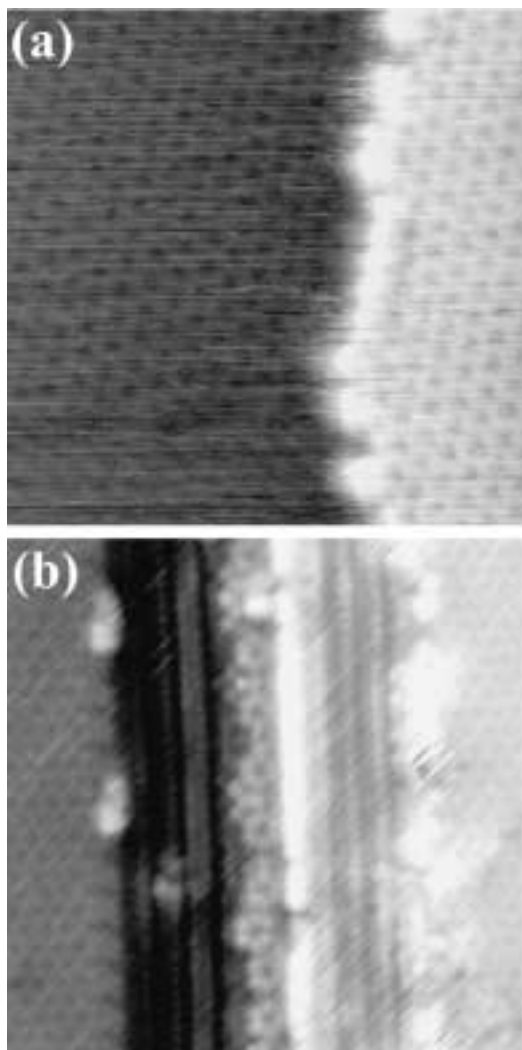
**Fig. 3** Si 2p core-level photoemission spectra from Si(111)  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag surfaces, prepared at (a) Process 1 and (b) Process 3, and (c) Ag deposition at 520 °C after Process 3. The spectra were taken at the incident and emission angles of 60 ° and 0 °, respectively.

それぞれのピークが分裂して合計で 4 つのピーク成分が存在することに気づく。表面の原子が 1 ML よりも過剰なときには Fig. 3 (a) (c) のようにスペクトルは幅広く, 600 °C の高温熱処理をほどこすと Fig. 3 (b) のように鋭いスペクトルが得られるのだ。この傾向は Ref. 3) の報告とも一致している。一方, 原子分解能での STM 観察を行った結果, テラス上の  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$  単位胞内での原子構造は 600 °C の熱処理では変化せず, また, ステップ密度もそれほど変わらなかった。よって, Fig. 3 での CLPES スペクトルの違いは, 上述のステップ形状の変化に関係すると考えられる。

Fig. 4 は, ステップ端近傍での高分解能 STM 像である。Fig. 2 (a) に対応した Process 1 での像が Fig. 4 (a) で, Fig. 2 (b) に対応した Process 3 での像が Fig. 4 (b) である。両方でステップ端での局所構造が著しく異なることがわかる。600 °C の熱処理をしていない Fig. 4 (a) では, ステップ端に 1 ~ 3 nm の大きさのクラスターがランダムに吸着している。他方, Fig. 4 (b) のステップ端近傍には ~ 2 nm の幅の  $6 \times 1$ -Ag ドメインが成長している。  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag と  $6 \times 1$ -Ag のドメイン境界は, 左側はランダムな輝点がほとんど無く, 急峻な境界を形成しているが, 右側の境界には輝点が無秩序に見られる。  $6 \times 1$ -Ag のドメインの幅はテラス全体の幅の ~ 1% と小さいので, Fig. 2 (b) の広範囲の像ではほとんど確認できない。このように熱処理の条件に依存して, ステップ全体の形に違いが生じるだけでなく (Fig. 2), Fig. 4 からわかるようにステップ近傍での局所構造にも著しい違いが生じる。

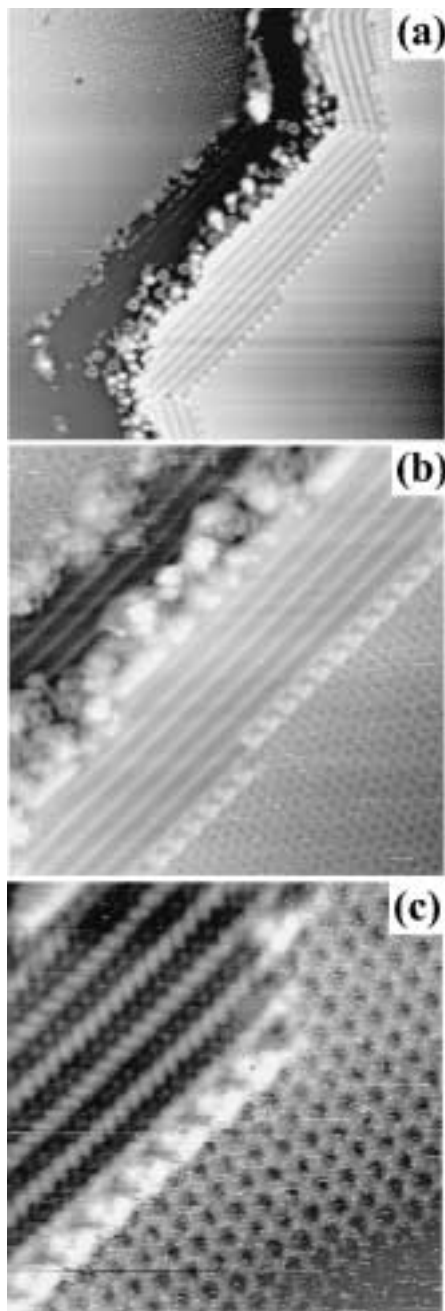
Fig. 2 (c) では, テラス上に暗くて直線的な細い線が見られる。これも幅の狭い  $6 \times 1$ -Ag ドメインである。  $6 \times 1$ -Ag ドメインは  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 超構造のステップ端近傍から成長すると同時に, ドメイン境界の近傍からも成長する。Fig. 5 は Process 3 でのドメイン境界付近を拡大した像である。境界の両側は同じ高さのテラス上にある  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag ドメインで, 中央の境界の両側にある  $6 \times 1$ -Ag 境界はダブルレイヤー分だけ高さが違っている。これは, 構造変化時に起こる Si 原子の移動のために生じるいわゆる「ホールアイランド対」である。中央の境界はランダムな吸着子によって修飾されているが,  $6 \times 1$ -Ag 構造の縞と平行になっている。右側の  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag ドメインと  $6 \times 1$ -Ag ドメインの間の境界は原子レベルで急峻で直線的であり, そこには周期的な輝点が観察される。他方, 左側の境界はランダムな形状である。境界にあるこれらのクラスターは超構造を再構成した結果できたものである。

$6 \times 1$ -Ag 構造の原子配列は honeycomb-chain-channel



**Fig. 4** Filled-state STM images near step edges on the Si(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag, prepared at (a) Process 1 and (b) Process 3, respectively. The images were taken in constant-current mode with (a)  $V = 1.99$  V and (b)  $V = 0.99$  V, respectively. The images sizes are (a)  $9.1 \times 9.1$  nm<sup>2</sup> and (b)  $13.1 \times 13.1$  nm<sup>2</sup>, respectively.

(HCC) モデルで説明されているが<sup>15)</sup>, 再構成層に存在する Ag と Si の量はそれぞれ 1/3 ML と 4/3 ML である。他方,  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 構造は inequivalent triangle (IET) モデルによって説明されているので<sup>16)</sup>, Ag と Si とともに 1 ML が再構成層に存在する。Ag 原子は熱処理によって表面から脱離して減少するが, Si 原子は脱離しない。それゆえ, 再構成層の Si 含有量の違いにより, 構造変化のときに Si 原子の質量輸送が起こる。つまり,  $7 \times 7$  の清浄表面から  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag へ転移するときと同じよう



**Fig. 5** Filled-state STM images at an out-of phase domain boundary on the Si(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag surface, prepared at Process 3, with sizes of (a)  $38.5 \times 38.5$  nm<sup>2</sup>, (b)  $28.5 \times 28.5$  nm<sup>2</sup>, and (c)  $11.1 \times 11.1$  nm<sup>2</sup>, respectively, with  $V = 1.99$  V.

に<sup>17)</sup>,  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 構造から  $6 \times 1$ -Ag 構造への転移でも, Si 含有量を調整するために, いわゆる「ホールアイラ

ンド対」形成を引き起こすのである。Fig. 4 と Fig. 5 で見られる境界にランダムにまたは周期的に吸着した吸着子は、再構成中に秩序相に取り込まれなかった Si または Ag 原子、あるいはその両方である。

#### 4. 考 察

Si 2p CLPES スペクトルと STM 観察結果の関係について、次の 2 つの解釈が考えられる。

ひとつは、ステップ端やドメイン境界で観測されたクラスターが Si 原子を含んでいて、それが Si 2p CLPES スペクトルの幅を広げるのに寄与しているという解釈である。そのような Si 原子は、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 構造の Si 原子と比べて化学的環境が異なっているため、その 2p 内殻準位のエネルギー位置がややずれていると考えられる。このためにスペクトルの幅が広がる。もしステップ端やドメイン境界のランダムな吸着子が無くなるまで試料を熱処理すれば、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 構造の Si 原子のみとなるので Si 2p スペクトルは鋭くなると考えられる。しかし、ステップ端やドメイン境界でのクラスターが占める面積の割合が非常に低いので、そこから放出される光電子の量はテラスからの光電子の量に比べてはるかに少ない。したがって、クラスターの影響を CLPES スペクトルで観測できないと考えられる。よって、この解釈は妥当ではない。

別の解釈では、ステップ端やドメイン境界に存在するランダムなクラスターが Ag を含んでいると考える。これが、前述した 2 DAG のリザーバーとして働くとする仮説である。この 2 DAG は電子を表面状態バンドに供与することで表面直下のバルクバンド湾曲の変化を引き起こすことは前に述べた<sup>8)</sup>。過去の結果によると<sup>8,9)</sup>、テラス上の 2 DAG はある一定濃度を超えると核形成を起こして 3 次元核を作る。この核はステップ端やドメイン境界に形成され、2 DAG 相と 3 次元核との間で熱力学的平衡状態となる。テラス上の 2 DAG の Ag 原子ガス濃度は、テラスやドメインの大きさ、周囲に存在するリザーバーの性質や数密度に依存すると考えられる。したがって、ドメインごとに濃度がわずかに異なり、結果として基板での局所的なバンド湾曲が試料全体で不均一になると考えられる。それゆえ、Si 2p のバルク成分と表面成分の結合エネルギーはテラスやドメインごとにわずかに異なり、その全体の平均として Si 2p スペクトル幅を広げると考えられる。もし熱処理を十分にすることで、2 DAG とそのリザーバーを表面から取り除けば、バンド湾曲は試料表面上で均一となり、CLPES スペクトルは鋭くなる。この解釈は Fig. 3 の CLPES の実験結果からも支持される。つまり、高温熱処理をして Si 2p CLPES

スペクトルが鋭くなっている。 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面上に (Fig. 3 (b))、故意に微量の Ag を追加蒸着すると、Si 2p CLPES スペクトルの幅が再び広がったという結果である (Fig. 3 (c))<sup>9)</sup>。このことは、表面上に余剰の Ag 原子が存在するとスペクトルの幅が広がることを意味している。

本実験から、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag のステップ端やドメイン境界から 6×1-Ag が形成される初期段階で (Fig. 2 (b) と Fig. 4 (b) に対応している)、最も鋭い Si 2p スペクトルが得られることが明らかになった。6×1-Ag 相の Si 2p ピークのエネルギー位置は、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 相の Si 2p のそれと全く違う。それゆえ、最も鋭い Si 2p スペクトルが得られる試料には、CLPES の測定限界に満たないほどわずかな割合だけ 6×1-Ag ドメインが含まれていることになる。このような状態にしないと、2 DAG およびそのリザーバーを除去することができないと考えられる。

#### 5. 結 論

S $\bar{X}$ (111)  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面構造を作成する際の熱処理条件を変えて、STM と RHEED、CLPES を用いて系統的に観測した。その結果、熱処理温度 (540 ~ 600 ) とその持続時間 (15 ~ 120 秒) に依存して、表面モルフォロジー、特にステップ端の局所構造と形状に著しい違いが生じることを見出した。熱処理が不十分な場合には、ステップは曲線的であり、ステップに沿って 3 次元クラスター状の吸着物がランダムに吸着していた。熱処理が十分な場合には、ステップは 10 $\bar{1}$  方向に揃って直線的となり、ステップに沿ったクラスターは同じ大きさとなって、かつ周期的に吸着していた。この場合、ステップ端には幅の狭い 6×1-Ag ドメインが形成されており、そのためにステップ端が直線的になっていた。このようなステップ端の構造の違いが CLPES に影響すると考えられる。つまり、熱処理が不十分なとき、ステップ端やドメイン境界にランダムに 3 次元クラスターが吸着していたが、これがテラス上に存在する Ag の 2 DAG のリザーバーとして働いていると考えられる。つまり、過去の研究からわかっているように<sup>8,9)</sup>、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面上には希薄な 2 DAG 相が存在しているが、その濃度がドメインごと、あるいはテラスごとに異なるとすると、表面直下のバルクバンド湾曲が場所によって局所的に異なり、試料表面全体でバンド湾曲が一樣でなくなる。その結果 Si 2p CLPES スペクトルがボケてしまうと考えられる。試料を十分に熱処理してリザーバーとなる 3 次元クラスターや 2 DAG 自体を取り除いてしまえば、基板のバンド湾曲は表面全体で一定となり、その結果、Si 2p のエネルギーが一定となって CLPES スペクトルが鋭

くなると考えられる。このように、ステップ端やドメイン境界そのものは、密度が低いため、直接的には CLPES の結果に影響を及ぼさないが、2 DAG を介して間接的に影響を及ぼしているといえる。

## 謝 辞

本研究は科学研究費補助金の援助を受けて行われた。

## 文 献

- 1) M. Herman, J.C. Woicik, A.B. Andrews and J.L. Erskine: Surf. Sci. Lett. **290**, L 643 (1993).
- 2) G. LeLay, M. Gothelid, A. Cricenti, C. Hakansson and P. Perfetti: Europhys. Lett. **45**, 65 (1998).
- 3) R.I.G. Uhrberg, H.M. Zhang, T. Balasubramanian, E. Landemark and H.W. Yeom: Phys. Rev. B **65**, 081305 (2002).
- 4) X. Tong, S. Ohuchi, T. Tanikawa, A. Harasawa, T. Okuda, Y. Aoyagi, T. Kinoshita and S. Hasegawa: Appl. Surf. Sci. **190**, 121 (2002).
- 5) S. Hasegawa, X. Tong, S. Takeda, N. Sato and T. Nagao: Prog. Surf. Sci. **60**, 89 (1999).
- 6) G. Le Lay, V. Yu. Aristov, L. Seehofer, T. Buslaps, R.L. Johnson, M. Gothelid, M. Hammar, U.O. Karlsson, S.A. Flodström, R. Feidenhans'l, M. Nielsen, E. Findeisen and R.I.G. Uhrberg: Surf. Sci. **307 309**, 280 (1994).
- 7) J. Nogami: Surf. Rev. Lett. **1**, 395 (1994).
- 8) Y. Nakajima, S. Takeda, T. Nagao, S. Hasegawa and X. Tong: Phys. Rev. B **56**, 6782 (1997); *ibid.*, **54**, 14134 (1996).
- 9) N. Sato, T. Nagao and S. Hasegawa: Phys. Rev. B **60**, 16083 (1999).
- 10) D.W. McComb, D.J. Moffatt, P.A. Hackett, B.R. Williams and B.F. Mason: Phys. Rev. B **49**, 17139 (1994).
- 11) K.J. Wan, X.F. Lin and J. Nogami: Phys. Rev. B **47**, 13700 (1993).
- 12) H. Ohnishi, I. Katayama, Y. Ohba and K. Oura: Jpn. J. Appl. Phys. **33**, 3683 (1994).
- 13) K. Sakamoto, H. Ashima, H.M. Zhang and R.I.G. Uhrberg: Phys. Rev. B **65**, 045305 (2001).
- 14) S. Hasegawa, H. Daimon and S. Ino: Surf. Sci. **186**, 138 (1987).
- 15) S.C. Erwin and H.H. Weitering: Phys. Rev. Lett. **81**, 2296 (1998).
- 16) H. Aizawa, M. Tsukada, N. Sato and S. Hasegawa: Surf. Sci. **429**, L 509 (1999).
- 17) A. Shibata, Y. Kimura and K. Takayanagi: J. Vac. Sci. Technol. B **12**, 2026 (1994).