

吸着原子誘起の局在状態と表面自由 電子ガスとの相互作用

劉 燦華・松田 巖・保原 麗・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

(2006年8月27日受理)

Interaction between Adatom-induced Localized States and Quasi-two-dimensional Electron Gas

Canhua LIU, Iwao MATSUDA, Rei HOBARA and Shuji HASEGAWA

Department of Physics, School of Science, University of Tokyo
7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033

(Received August 27, 2006)

Using angle-resolved photoemission spectroscopy, we have investigated changes in the band dispersion of a free-electron-like surface state of Si(111)- $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag, induced by adsorption of submonolayer Au adatoms. At room temperature, where the adatoms are in a two-dimensional adatom-gas phase, electrons are transferred from the Au adatoms to the substrate, shifting the surface band downwards and increasing the band occupation (carrier doping), and also causing it to deviate from a parabolic dispersion. At 135 K where the Au adatoms are frozen at specific sites of the substrate, the surface-state band splits into two. This is the first experimental verification of band splitting that can be explained in terms of hybridization between the unperturbed surface-state band and the localized virtual bound states induced by the adatoms. This kind of interaction between localized states around individual impurity atoms and extended carriers are very important and common in various physical phenomena such as Kondo effect and diluted magnetic semiconductors.

1. はじめに

半導体結晶の最表面に形成される表面電子状態は、真空側と下地結晶バルクのバンドギャップとの間で作られたポテンシャル障壁に挟まれているので、1, 2原子層厚さの二次元電子ガス (Two-Dimensional Electron Gas, 2DEG) を作っている。従来の半導体界面や表面反転層に形成される2DEGとは異なる新しいタイプの2DEGとして最近盛んに研究されている。一方、半導体結晶中では、極めて微量の不純物がさまざまな物性を決める決定的な役割を果たしていることから、電子ガスの中に不純物をドーピングして、例えば希薄磁性半導体を作り出すことなどが行われている。これは3次元電子系だけでなく2次元電子系でも起こるはずである。しかし、3次元電子系と違って2次元電子ガスの中に引力ポテンシャルを持つ不純物が存在すると、その不純物の周りに少なくと

も1つ以上の束縛状態が必ず誘起されるということは30年も前に理論的に示されていた¹⁾。つい最近、このような束縛状態は走査トンネル顕微鏡/分光法 (Scanning Tunneling Microscopy/Spectroscopy, STM/S) によって、金属表面上で微量な吸着原子の周りで検出されている^{2, 3)}。この束縛状態の存在は、表面状態の2次元性および吸着原子がその周りに引力ポテンシャルを形成した必然的な結果である。言い換えると、2次元電子ガスを持つ表面上に微量の原子を吸着させて、しかもこの吸着原子が基板表面の電子に対して引力ポテンシャルを誘起すれば、必ず吸着原子の周りに束縛状態が誘起されるはずである。しかも、この吸着原子の誘起した束縛状態は表面バンドと混成し、お互いのスペクトル特性を変化させることも予想される³⁾。今までのSTM/S実験では、混成効果による束縛状態のスペクトル変化を検出できたが、2DEGバンドへの影響についてはまだ報告されていない。このような束縛状態と2DEGバンド (言い換えれば、遍歴状態)との相互作用は液体合金、近藤結晶、

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

および重い電子系などの結晶系にも現れるので、大変注目されている。

シリコン表面上に1原子層 (monolayer, ML) の Ag を吸着させて作った $\text{Si}(111)-\sqrt{3}\times\sqrt{3}\text{-Ag}$ 表面 (以下は $\sqrt{3}\text{-Ag}$ と略す) は、バルクのエネルギーギャップ内でフェルミ準位を横切る放物線的分散を持つ表面バンドを持っているので、2 DEG 表面系としてよく知られている⁴⁾。この表面上に一価金属の貴金属 (Au, Ag, Cu) またはアルカリ金属 (Na, K, Rb, Cs) を 0.1~0.2 ML 吸着させると、その価電子が下地に供与され、 $\sqrt{21}\times\sqrt{21}$ の周期を持つ新たな金属的な表面超構造が形成される^{5, 6)}。しかし、一価金属の吸着量を減らすと、吸着子は $\sqrt{3}\text{-Ag}$ 表面上にランダムに散在する陽イオンになるので^{8~10)}、下地結晶の表面状態電子に対して引力ポテンシャルを作り、その周りに束縛状態が現れると考えられる。こうした微量な一価金属原子が吸着した $\sqrt{3}\text{-Ag}$ 表面は束縛状態と遍歴状態との相互作用についての研究に格好の系といえる。

これまで報告された Ag や Cs 吸着原子と同様に^{8, 10)}、Au 吸着原子も $\sqrt{3}\text{-Ag}$ 表面上での振舞いが温度に依存して異なる。室温では、吸着原子が高い移動度で自由に動き回るので (いわゆる2次元吸着原子気体相)、STM では検出できない (Fig. 1 (a))。温度を下げると、吸着原子は運動エネルギーを失い、すべて同一の特定サイトに固定化されるので、Fig. 1 (b) のように STM で捕らえることができる。したがって、吸着子誘起束縛状態は室温と低温でその特性が異なり、基板表面の自由電子状態との混成状態も異なると考えられる。

そこで、 $\sqrt{3}\text{-Ag}$ 表面上に極微量な Au 原子 (0.01~0.03 ML) を吸着させ、この表面の2 DEG バンドを角度分解光電子分光法 (Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy, ARPES) で調べた。特に室温と135 Kでのバンドの変化の違いについて議論する。室温では、 $\sqrt{3}\text{-Ag}$ 表面が吸着 Au 原子から電子を供与され、表面2 DEG バンドが結合エネルギーの深い方向にシフトすると共に、放物線の分散関係からずれることが明らかとなった。このように吸着原子から表面バンドへ電子がドーピングされる現象は、表面電子状態伝導度の増加として過去に報告されている¹¹⁾。興味深いのは、135 Kになると2 DEG バンドが上下2つに分裂したことである。このバンドの分裂こそが吸着原子の誘起した局在束縛状態と2 DEG バンドとが混成した結果であることが明らかになった¹²⁾。

2. 実 験

実験は背景圧力が $\sim 1\times 10^{-10}$ Torr である超高真空チャンパー中で行われた。清浄な $\text{Si}(111)-7\times 7$ 表面を ~ 520

°Cに直流通電加熱しながら、1 ML の Ag 原子を蒸着して $\sqrt{3}\text{-Ag}$ 表面を形成する。そして、 $\sqrt{3}\text{-Ag}$ 表面を室温に冷却してから極微量の Au 原子を蒸着してサンプル作成を完了する。ARPES 実験での光源は21.2 eV のフォトンを出す HeI ランプで、電子分析器は Scienta SES-100 である。光電子強度を考慮し、 ~ 35 meV のエネルギー分解能に設定した。

3. 結果 と 考 察

Fig. 2 は、Au 原子が吸着した $\sqrt{3}\text{-Ag}$ 表面の室温および135 KでのARPES測定結果を示している。図の上段は室温で、下段は135 Kで測定した2 DEG バンドの分散であるが、両者の違いは一目瞭然で、室温での2 DEG バンド (S_1 バンドと呼ばれている) が135 Kになると、上下2つに分裂している。これは本稿の主要な実験結果であるが、これを議論する前に、室温で観察された S_1 バンドの金原子の吸着量による変化について、重要な2つの事実を述べておこう。

A. 室温での結果

まず、Au 原子の吸着量の増加にともなって、自由電子バンド S_1 が結合エネルギーの高い方向にシフトしていることに気づく。これは他の一価金属原子の吸着の場合と同じように¹¹⁾、Au 原子が価電子を下地に与えたことに起因するという定性的な解釈が与えられているが、ここで定量的な解析を行う。Fig. 2(a)~(c)の S_1 バンドの分散から、Au 原子のそれぞれの吸着量 0.01 ML, 0.02 ML および 0.03 ML のサンプルに対して、フェルミ波数ベクトル k_F はそれぞれ 0.066Å^{-1} , 0.093Å^{-1} , および 0.113Å^{-1} と得られる。 S_1 バンドには異方性がないことが知られているので⁴⁾、この S_1 バンドを占有する電子の数は $k_F^2/2\pi$ と書ける。よって、各 Au 吸着量の表面 (Fig. 2(a)~(c)) にはそれぞれ $6.93\times 10^{16}\text{e}^-/\text{m}^2$, $1.38\times 10^{17}\text{e}^-/\text{m}^2$, および $2.03\times 10^{17}\text{e}^-/\text{m}^2$ の電子が S_1 バンドを占有していることがわかる。これらの数密度を被覆率に換算すると、それぞれちょうど 0.01 ML, 0.02 ML および 0.03 ML となる。すなわち、2 DEG の電子密度が Au 吸着原子の数密度とほぼ同じである。このことから、1個の Au 吸着原子が1個の電子を下地に与えたことがわかった。したがって、Au 吸着原子は完全に陽イオンになり、周りの2 DEG に対して引力ポテンシャルを与えるといえる。

もう1つの重要な結果は、Au 原子の吸着によって S_1 バンドが深い結合エネルギーへシフトすると共に、自由電子の放物線的な分散からずれていくということである。これは S_1 バンドと他のバンドとの相互作用の結果だと考えられる。実は $\sqrt{3}\text{-Ag}$ 表面の電子構造には S_1 バ

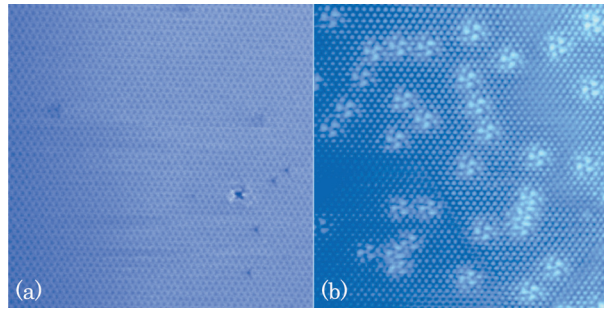


Fig. 1. Topographic STM images ($31.2 \times 31.2 \text{ nm}^2$) of the $\sqrt{3}$ -Ag surface with 0.02 ML of Au adatoms, taken at (a) room temperature, $V_{tip} = 1.80 \text{ V}$, $I = 0.75 \text{ nA}$, and (b) 65 K, $V_{tip} = -0.50 \text{ V}$, $I = 0.75 \text{ nA}$. There are no indication of adatoms on the surface at RT because of the fast migration.

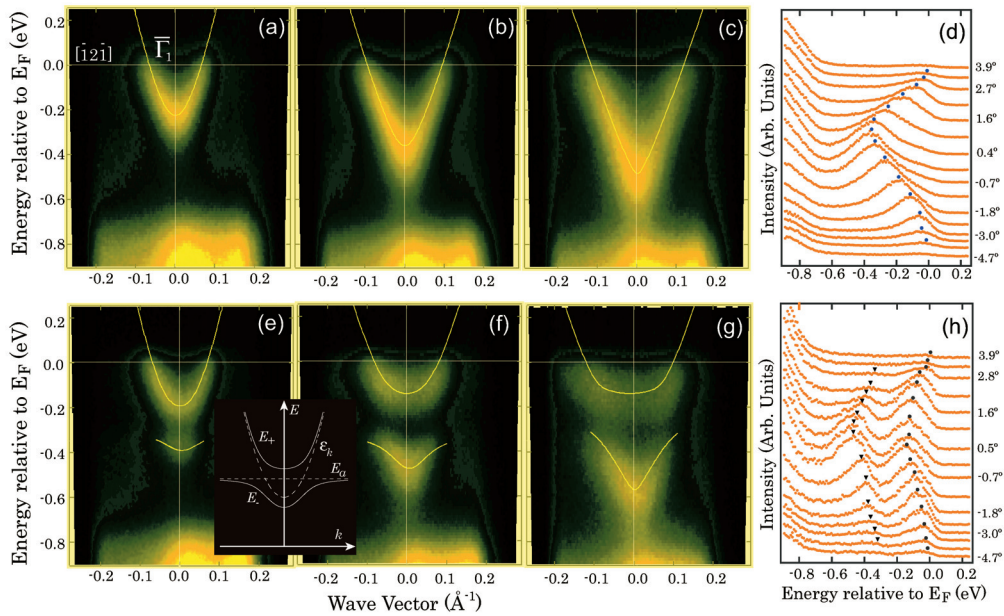


Fig. 2. Band dispersion of the $\sqrt{3}$ -Ag surface taken at RT (a-d) and 135 K (e-h) with Au adsorptions at various coverages, (a) (e) 0.01 ML, (b) (f) 0.02 ML, and (c) (g) 0.03 ML. The origin of wave vector is the $\bar{\Gamma}$ point of the second $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ surface Brillouin zone ($k = 1.09 \text{ \AA}^{-1}$ on the direction of $[10\bar{1}]$). Solid lines are fitted results by Eq. (1) (a-c) and Eq. (3) (e-g). (d) and (h) are parts of raw spectra of (b) and (f), respectively. The inset between (e) and (f) is a schematic illustration of the hybridization between a conduction band and a localized virtual bound state.

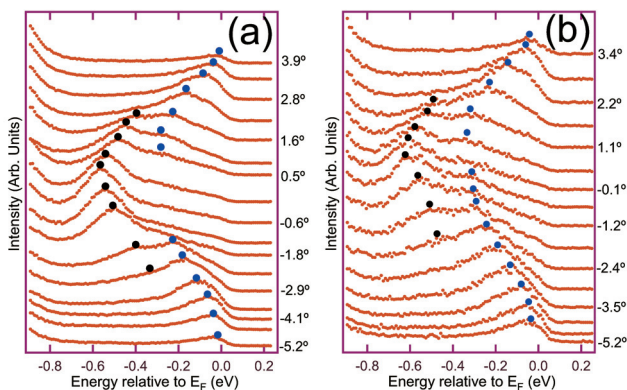


Fig. 3. ARPES results of the $\sqrt{3}$ -Ag surface with small amounts ($\sim 0.03 \text{ ML}$) of Ag (a), and Cs (b) adatoms deposited at 135 K. The measurement condition is the same as for the Au adatoms.

Table 1. Parameters in Eqs. (1) and (3) employed to fit the bands in Fig. 2 at RT and at 135 K, respectively.

Coverage	m^*/m_0	E_s (eV)	E_g (eV)	E_a (eV)	V (eV)
0.01 ML	0.064 (5)	-0.22 (3)	0.90 (4)	-0.21 (3)	0.11 (2)
0.02 ML	0.054 (4)	-0.36 (1)	0.35 (5)	-0.26 (5)	0.13 (1)
0.03 ML	0.023 (3)	-0.48 (1)	0.10 (2)	-0.19 (3)	0.12 (3)

ンドのほかに、結合エネルギーが ~ 1 eVの所にもう2つ表面バンド S_2 と S_3 が存在する^{5, 6}。興味深いのは、Au吸着原子から電子を受け取って S_1 バンドが結合エネルギーの増加する方向にシフトするにもかかわらず、 S_2 と S_3 バンドはほとんどシフトしないことである。これはrigid bandのモデル描像が $\sqrt{3}$ -Ag表面の電子構造では崩れる決定的な証拠である⁷。 S_1 バンドが下にシフトするにつれ、 S_2/S_3 バンドとのエネルギー間隔が縮むので、バンド間の相互作用が強くなると考えられる。このバンド間の相互作用こそが S_1 バンドの非放物線的な分散を引き起こす原因となる。

第一原理理論計算およびSTSの測定結果からすでにわかっているように、 S_1 バンドは主にAg原子の p_x と p_y 軌道から、 S_2 と S_3 バンドは主にAg原子の s 軌道と少しの $5p$ 軌道が混成してできている¹³。そこで、一般に半導体の価電子バンドの構造をよく記述する $k \cdot p$ 摂動論を適用してみる¹⁴。単純化のために、スピン-軌道相互作用を無視したKaneモデルの下で、非摂動の基本関数系として s -likeの軌道波動関数 $u_s(\mathbf{r})$ と縮退した p -like軌道波動関数 $u_j(\mathbf{r})$ ($j=x, y$)を用いた。そうすると、バンド分散は下の式で記述できる¹⁴：

$$E(\mathbf{k}_{\parallel}) = E_s \frac{E_g}{2} + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m_0} + \left[\left(\frac{E_g}{2} \right)^2 + \frac{E_g \hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m^*} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (1)$$

ここで、 m_0 は自由電子質量で、 $E_g = E_s - E_p$ は $\mathbf{k}=0$ での s と p 軌道の非摂動エネルギーギャップである。有効質量は $m^* = \hbar^2 E_g / 2 |P|^2$ であり、ここで $P = -(i\hbar/m_0) \langle u_s | \hat{p}_j | u_j \rangle$ である。

Au原子が吸着していない「清浄な」 $\sqrt{3}$ -Ag表面では、 S_1 バンドと S_2/S_3 バンドとのエネルギーギャップ E_g が十分に大きいので、式(1)は自由電子モデルの放物線的なバンド分散の式に単純化することができる。しかし、 S_1 バンドが下にシフトした際に、 $\bar{\Gamma}$ 点から離れて波数 \mathbf{k}_{\parallel} が大きくなっていくと、 $E(\mathbf{k}_{\parallel})$ の値は E_g と同程度になるので、自由電子モデルへの単純化はもう適応できなくなる。式(1)を用いて、ARPESで測定された S_1 バンドをfittingすることで正確なバンド分散が得られるわけである。Fittingの結果はFig. 2 (a)~(c)の実線で示さ

れており、そのときのfittingのパラメータはTable 1にまとめた。 E_s の値は実験データの S_1 バンドの底($\bar{\Gamma}$ 点)と一致しているし、 E_g および m^* の値が S_1 バンドのシフトと共に減少していく傾向は通常のKaneモデルの結果と合うので、式(1)は S_1 バンドをよく記述しているといえる。

以上述べたように、室温において極微量のAu吸着原子が表面バンド S_1 に与える影響をまとめると、(1) Au原子から表面バンドへキャリア・ドーピングされてバンド占有率が増加すること、および、(2) 他のバンドとの相互作用によってバンド分散の非調和性が増加することである。

B. 低温での結果

それでは、 S_1 バンドが135 Kで上下2つに分裂したことについて議論しよう。実はAu原子だけでなく、Fig. 3に示したように、極微量のAgやCaなどの一価金属原子の吸着によっても S_1 バンドが分裂することがわかった。ただし、 $\sqrt{3}$ -Ag表面上でのAgとCs吸着原子は、液体窒素温度でもAu原子ほど安定して特定の吸着サイトに固定されないため、STMでAgとCs吸着原子を捉えることができず、2次元原子ガス状に近い状態になっているらしい。したがって、 $\bar{\Gamma}$ 点付近でのバンド分裂はAuの場合より不明確である。とくにAg吸着の場合、 S_1 バンドが分裂するかどうかは蒸着時の基板温度に依存した。つまり、Fig. 3 (a)に示したような S_1 バンドの分裂が観察されたのは、Ag原子を135 Kに維持された $\sqrt{3}$ -Ag表面上に蒸着した場合であるが、Ag原子を室温の $\sqrt{3}$ -Ag表面に蒸着してから135 Kに冷却した場合には S_1 バンドの分裂は観測できなかった。この実験事実から、 S_1 バンドの分裂は微量な吸着原子の吸着形態と深い関係があるといえる。何故ならば、低温で吸着したAg原子はFig. 2 (b)のようなクラスタ状または孤立原子として吸着していることが観察されたが、室温で吸着させた場合には、Ag原子が三次元的な微結晶アイランドを形成してしまうことがわかっているからである¹¹。したがって、 S_1 バンドの分裂はFig. 2 (b)のようにAu, AgおよびCsなどの吸着原子が $\sqrt{3}$ -Ag表面の特定なサイトに散在して定着したことによると考えられる。

金属結晶表面上に吸着した微量な原子^{2, 3)}, または半導体の空間電荷層中での不純物原子のように¹⁵⁾, $\sqrt{3}$ -Ag 表面上にランダムに散在して吸着している Au 吸着原子の周りに S_1 バンドの電子に対して束縛状態が誘起されると考えられる。その吸着原子の数密度が高くなると、それぞれの吸着原子周りの束縛状態の波動関数が重なり合うことによって、分散の弱い「不純物バンド」を形成することができる。例えば、半導体の反転層に注入したナトリウム陽イオンの密度が $10^{11} \sim 2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ であれば不純物バンドが形成されることが知られている¹⁵⁾。本研究では、Au 吸着原子の密度が同程度であるから、Au 吸着原子の誘起した束縛状態が分散の弱い不純物バンドを形成することが考えられる。そして、この不純物バンドの結合エネルギーがちょうど S_1 バンドを横切る値であれば(共鳴バンドになる), 両バンドが混成して、 S_1 バンドを上下2つに分裂させることが起こり得る。しかし室温では、Au 吸着原子が特定のサイトに吸着していないので、吸着子の誘起した束縛状態のエネルギー準位や波動関数の対称性がばらばらになってしまうため、不純物バンドが形成されないと思われる。したがって、 S_1 バンドとの混成が起こらず、 S_1 バンドの分裂も室温では観察されなかったわけである。ここで、Au 吸着原子による不純物バンドの形成は1つの仮定に過ぎないが、これに基づいて、下に述べるように S_1 バンドの分裂が定量的に解釈できるので、この仮定は妥当であると考えられる。

135 K では、Au 原子が $\sqrt{3}$ -Ag 表面上の特定のサイトに吸着しているので、Au 吸着原子の原子配列は $\sqrt{3}$ -Ag 表面構造の原子配置の部分集合である。したがって、 S_1 バンドを記述する同じ運動量系で Au 吸着によって誘起された共鳴バンドを記述することが可能である。この共鳴バンドの分散が弱いとして、その結合エネルギーを一定値 E_a と仮定すれば、Au 原子の吸着した $\sqrt{3}$ -Ag 表面の二次元自由電子系の Hamiltonian は下記のように表される。

$$H = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \left[\epsilon_{\mathbf{k}} \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma} + E_a \hat{a}_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}\sigma} + V \left(\hat{a}_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma} + \hat{c}_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}\sigma} \right) \right] \quad (2)$$

ここで、第1項は混成していない時の波数ベクトル \mathbf{k} およびスピン σ を持つ表面電子バンド $\epsilon_{\mathbf{k}}$ を記述している。第2項は混成する前の吸着原子が誘起した共鳴バンドを記述している。第3項は基板の表面電子バンドと吸着子誘起の共鳴バンドが混成する際の相互作用を表している。単純化のため、混成エネルギー V が波数ベクトル \mathbf{k} に依存しないと近似した。この Hamiltonian を対角

化すれば、混成後のバンド分散は下記ようになる。

$$E_{\pm} = \frac{1}{2} (\epsilon_{\mathbf{k}} + E_a) \pm \frac{1}{2} \sqrt{(\epsilon_{\mathbf{k}} - E_a)^2 + 4V^2} \quad (3)$$

式中の混成前の表面電子バンド $\epsilon_{\mathbf{k}}$ は室温で取ったバンド分散図 Fig. 2 (a)~(c) から情報が得られる、即ち、 $\epsilon_{\mathbf{k}} = E(\mathbf{k}_{\parallel})$ 。そして、式(1)を式(3)に代入して、 $E(\mathbf{k}_{\parallel})$ に関しては Table 1 のパラメータを使えば、式(3)の中の未知パラメータは束縛状態のエネルギー準位 E_a と混成エネルギー V の2つのみとなる。式(3)を使って、低温で得られたバンド分散図を fitting してみたら、Fig. 2(e)~(g) の実線からわかるように、非常によく一致することがわかる。各 Au 吸着量の試料に使われたパラメータ E_a と V は Table 1 にまとめてある。この表からわかるとおり、束縛状態の共鳴バンドのエネルギー準位 E_a の値は約 0.22 eV、混成エネルギー V の値は ~ 0.11 eV で、両方とも Au 吸着原子の量に依存しない。これは散在している個々の Au 吸着原子が周りの電子に与える引力ポテンシャルによってのみ決められるからである。

束縛電子状態と自由電子的な表面バンドとの混成効果の模式図は Fig. 2 (e) と (f) の間に示してある。混成前の自由電子バンド $\epsilon_{\mathbf{k}}$ と局在的な束縛状態 E_a は破線で表してある。混成が起こると、 $\epsilon_{\mathbf{k}}$ バンドと E_a バンドは新たな E_+ と E_- バンドになるが、これは波数ベクトルの小さい領域では $\epsilon_{\mathbf{k}}$ バンドの寄付が支配的なので上下2つに分裂したように見られる。これに対して、波数ベクトルの大きい領域では E_a バンドの寄付が大きいので、分散が弱くなっている。ただし、束縛状態の共鳴バンドからのシグナルが弱いので、Fig. 2 (e)~(g) の波数ベクトルの大きい領域では状態が観測されない。

S_1 バンドが分裂し、エネルギーギャップが開くということは、直感的に解釈すれば、 S_1 バンド中のエネルギー準位 E_a 付近にある遍歴電子が Au 吸着原子の周りの束縛状態にトラップされたということである。このエネルギーギャップの大きさ、およびエネルギー準位はそれぞれ V および E_a によって示されている。一方、 $\sqrt{3}$ -Ag 表面上の Au 被覆量が 0.14 ML になると Au 吸着原子が自己組織化して、新たな表面超構造 $\text{Si}(111)\text{-}\sqrt{21} \times \sqrt{21}\text{-}(\text{Ag}+\text{Au})$ が形成され、2 DEG バンドが $\sqrt{21} \times \sqrt{21}$ の Brillouin ゾーン境界でエネルギーバンドギャップを開く¹⁶⁾。大変興味深いのはこのエネルギーバンドギャップのエネルギー準位は E_F から測っておよそ ~ 0.25 eV で、Fig. 2 (e)~(g) でみたエネルギーギャップの準位とはほぼ同じである。しかも、そのギャップの大きさは 55 meV で、今回みた混成効果によって形成されたエネルギーギャップ (~ 110 meV) のちょうど半分になって

いる。電子の挙動は常に原子配列と深くかかわるものなので、Si(111)- $\sqrt{21} \times \sqrt{21}$ -(Ag+Au)表面超構造はランダムな Au 原子の自己組織化の結果だということから考えると、両方の電子バンドに現れたエネルギーギャップの大きさおよびそのエネルギー位置の類似性が決して偶然ではないと考えられる。この点は、結晶成長のバンド構造からみた原動力に関してもっと根本的な理解を得るためにも今後の1つの重要な研究テーマであると思われる。

4. ま と め

以上まとめると、 $\sqrt{3}$ -Ag 表面上に吸着した極微量な Au 原子が下地基板の表面状態に電子を与えて、陽イオンになり、下地表面状態の遍歴電子に対してランダムな引力ポテンシャルを作り出す。その結果、Au 吸着原子の周りに束縛状態が形成され、下地の二次元電子気体的な表面バンドと混成して、その表面電子バンドを上下2つに分裂させることを初めて実験的に明らかにした。

謝 辞

お茶の水女子大学の小林功佳先生のご助言に深く感謝致します。この研究は日本学術振興会からの科学研究費補助金による支援を受けました。

文 献

- 1) B. Simon: Ann. Phys. (N.Y.) **97**, 279 (1976).
- 2) F.E. Olsson, M. Persson, A.G. Borisov, J.-P. Gauyacq, J. Lagoute and S. Fölsch: Phys. Rev. Lett. **93**, 206803 (2004).
- 3) L. Limot, E. Pehlke, J. Kröger and R. Berndt: Phys. Rev. Lett. **94**, 036805 (2004).
- 4) T. Hirahara, I. Matsuda, M. Ueno and S. Hasegawa: Surf. Sci. **563**, 191 (2004).
- 5) S. Hasegawa, X. Tong, S. Takeda, N. Sato and T. Nagao: Prog. Surf. Sci. **60**, 89 (1999).
- 6) I. Matsuda, T. Hirahara, M. Konishi, C. Liu, H. Morikawa, M. D'angelo and S. Hasegawa: Phys. Rev. B **71**, 235315 (2005).
- 7) J.N. Crain, M.C. Gallagher, J.L. McChesney, M. Bissen and F.J. Himpsel: Phys. Rev. B **72**, 045312 (2005).
- 8) C. Liu, I. Matsuda and S. Hasegawa: Surf. Interface Anal. **37**, 101 (2005).
- 9) C. Liu, S. Yamazaki, R. Hobara, I. Matsuda and S. Hasegawa: Phys. Rev. B **71**, 041310 (R) (2005).
- 10) N. Sato, T. Nagao and S. Hasegawa: Phys. Rev. B **60**, 16083 (1999).
- 11) Y. Nakajima, S. Takeda, T. Nagao, S. Hasegawa and X. Tong: Phys. Rev. B **56**, 6782 (1997).
- 12) C. Liu, I. Matsuda, R. Hobara and S. Hasegawa: Phys. Rev. Lett. **96**, 036803 (2006).
- 13) L. Chen, H.J. Xiang, B. Li, A. Zhao, X. Xiao, J. Yang, J. G. Hou and Q. Zhu: Phys. Rev. B **70**, 245431 (2004).
- 14) J.H. Davies: "The Physics of Low-dimensional Semiconductors" (Cambridge University Press, 1998).
- 15) T. Ando, A.B. Fowler and F. Stern: Rev. Mod. Phys. **54**, 437 (1982).
- 16) J.N. Crain, K.N. Altmann, C. Bromberger and F.J. Himpsel: Phys. Rev. B **66**, 205302 (2002).