



## 放射光励起 Al 選択 CVD とその反応制御機構

上杉 文彦\*, 西山 岩男

NEC マイクロエレクトロニクス研究所

\*現住所: NEC 材料部品分析評価センター

### Synchrotron Radiation Induced Selective CVD of Al and the Reaction Control Mechanisms

Fumihiko UESUGI\* and Iwao NISHIYAMA

NEC Corp., Microelectronics Research Laboratories

\*Present Affiliation: NEC Corp., Analysis and Evaluation  
Technology Center

The irradiation effects of synchrotron radiation (SR) on Al thermal chemical vapor deposition (CVD) are studied. Two new phenomena, suppression of the thermal CVD reaction on Si surface and initiation of that on SiO<sub>2</sub> one are observed. It is clarified that these phenomena are caused by surface modified layer of atomic level thickness formed by SR induced photochemical reaction. Photon energy dependence is clearly observed. The suppression effect is observed by inner shell electron excitation, while the initiation one is effectively caused by valence electron excitation. By using these SR induced control of the CVD, negative and positive direct projection patterning of Al films are successfully demonstrated.

#### 1. はじめに

シンクロトロン放射光 (SR) は、純粋な学術研究だけでなく半導体産業にとっても、各種材料の分析や構造解析などで欠くことのできないツールとなっている。SRはまた、光化学およびこれを応用する光プロセスにとっても魅力的な光源である。それは、物質の光吸収断面積が大きくなる真空紫外から軟X線にかけての領域で、輝度が高く、しかも波長可変な励起光源として使用できるからで

ある。また、軟X線領域の光励起では内殻電子励起が可能であり、価電子励起による化学反応とは異なる過程での特異な反応が期待される。つまり、内殻正孔の緩和による多価正イオン生成、それに引き続いて生じるクーロン爆発による化学結合切断といった過程に基づく<sup>1)</sup>、原子や化学結合の選択的励起の可能性<sup>2)</sup>を有している。これらは、光化学反応としても、また、半導体光プロセスのシーズとしても魅力的である。

NEC マイクロエレクトロニクス研究所 LSI基礎研究部 〒305 茨城県つくば市御幸が丘34

TEL 0298-50-1170 (直) FAX 0298-56-6138 e-mail nisiyama@lbr.cl.nec.co.jp

\*NEC 材料部品分析評価センター 信頼性評価部 〒211 神奈川県川崎市中原区下沼部1753

TEL 044-435-1438 (直) FAX 044-435-1873 e-mail uesugi@dret.cl.nec.co.jp

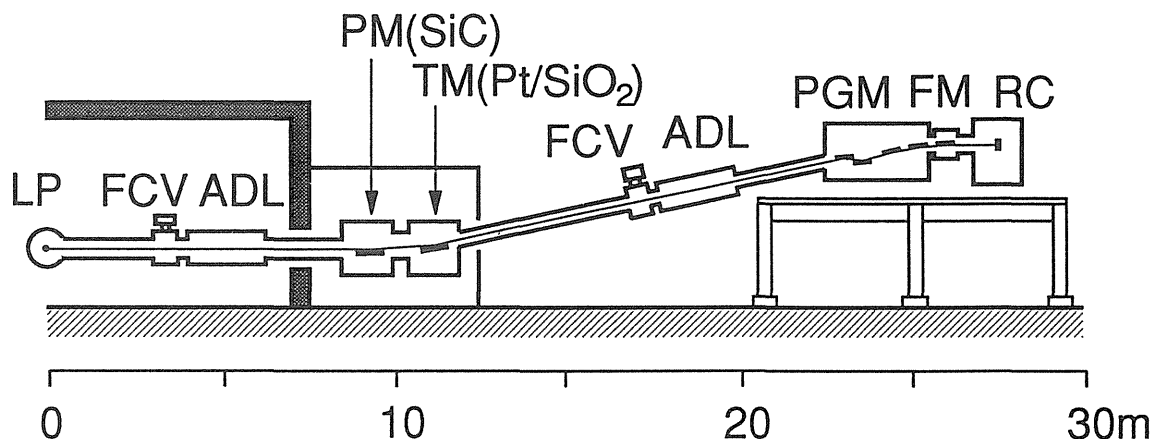


Fig.1 Schematic view of the BL-9B beam line.

LP: light point, FCV: fast closing valve, ADL: acoustic delay line, PM: plane mirror, TM: troidal mirror, PGM: plane grating mirror, FM: focusing mirror, RC: reaction chamber.

しかしながら、現在、この波長領域で使用できる光源が限られており、光化学反応自身の研究も未開拓な面が多い。そこで我々は、短波長光励起によって誘起される表面光化学反応の理解と、これを応用した革新的な半導体プロセス技術のシーズ探索、の2つの面でSR励起プロセスの研究を進めている。

本報告では、DMAH (Dimethyl aluminum hydride;  $\text{Al}(\text{CH}_3)_2\text{H}$ ) を原料とするAlの熱CVD中へのSR照射効果の研究で見いだされた、表面光化学反応が引き起こす興味深い現象を紹介し、その反応制御機構と応用可能性について述べる<sup>3-7)</sup>。

## 2. 実験

SR照射実験は高エネルギー物理学研究所放射光実験施設に建設した光化学研究用ビームラインBL-9Bで行った。このビームラインの詳細は別報で既に報告済みなので概略について述べる<sup>3)</sup>。図1にビームラインの構成概念図を示す。SiC平面ミラーとPt/SiO<sub>2</sub>トロイダルミラーを用いて蓄積リングのベンディングマグネットからのSRを12°の角度ではね上げ、分光器を通して反応装置に導く。使用できる高エネルギー限界は310eVである。SR光強度は300mAの蓄積電流時に約 $1 \times 10^{16}$  photons/cm<sup>2</sup>・sである。

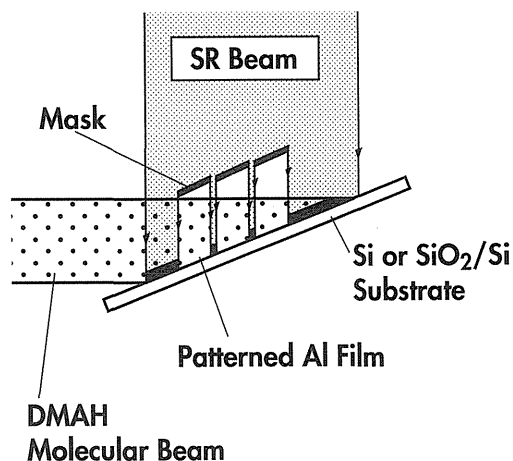


Fig.2 Schematic diagram of SR induced direct patterning of an Al film.

反応装置には分子線を用いており、背圧は $5 \times 10^{-10}$  Torr, ビーム強度は約 $1 \times 10^{14}$  molecules/cm<sup>2</sup>・s, 実験中の反応室圧力は $5 \times 10^{-8}$  Torrである。この条件では表面反応が支配的で、気相2次反応は無視できる。図2に、SR照射実験における分子線、SR光、マスク、および、基板の典型的な配置構成を示す。SR光と分子線は90°で交差し、基板はその交点に設置されている。SR光は基板に対して視斜角25°で照射している。

Si基板表面の清浄化処理は通常のカ洗浄と真空中の1000°C、10分間の加熱クリーニングの組合せによって行った。また、SiO<sub>2</sub>表面の清浄化では、1.6%のHF水溶液に浸漬した後に加熱クリー

ニングを行った。清浄表面の確認には、オージェ電子分光法 (AES) と反射高エネルギー電子線回折 (RHEED) を用いた。

励起波長依存性を調べる実験では、分光器を短波長カットフィルター的な使い方をするることによって、照射する波長領域を変えた。これは分光器のミラーの組合せを変えて、ミラーへのSRの入射角を変えることによって短波長成分を逐次カットするものである。各ミラーの組合せによって分光モードはP<sub>0</sub>からP<sub>4</sub>までの5通りある。表1に各分光モードにおける高エネルギー限界と相対的な光強度をまとめて示す。励起波長依存性の実験では各分光モードで光強度が等しいことが望ましい。しかし、短波長成分をカットする方法では表1に示すように光強度が変化し、励起波長依存性の結果の中に強度変化の影響が入ってくる。そこで、強度が最も強いP<sub>0</sub>モードでの実験を、波長分布はそのまま光強度を低くできるシングルバンチモードで実験を行った。このときのモードをP<sub>0</sub> singleとすると、その相対強度は約12になり、P<sub>3</sub>, P<sub>4</sub>の実験結果と比較できるようになる。

### 3. 熱CVD中のSR照射効果

Alの熱CVDに対するSR照射効果の例を図3に

示す。これらは開口形状が1辺20 $\mu$ mの正方形のNiメッシュをマスクにして得られたAl膜のパターン転写の結果である。(a)は清浄Si表面上、(b)はSiO<sub>2</sub>表面上の場合である。熱CVDは200 $^{\circ}$ Cで90分間行った。SRの照射は(a)の場合ではCVD中継続して行い、(b)では、はじめの10分間だけ照射した。10分間の照射時間は最適化した照射時間である。また、SRの照射はP<sub>0</sub>モードで行い、その光エネルギー領域は310eV以下の白色光である。

白っぽく見えている部分はAl膜が成長している部分で、膜厚は約100nmである。黒っぽく見えている部分は下地のSiまたはSiO<sub>2</sub>の部分である。Al膜の組成は、in-situオージェ分析を用いて調べたところ、純粋なAlが成長していることが解った。

これらのパターン転写の結果から、基板の性質

Table 1 Upper limit energy and the relative intensity corresponding to the mirror mode.

Mode	Upper limit energy/eV	Relative intensity
P <sub>0</sub>	310	100
P <sub>1</sub>	208	68
P <sub>2</sub>	138	50
P <sub>3</sub>	83	20
P <sub>4</sub>	46	6
P <sub>0</sub> single	310	12

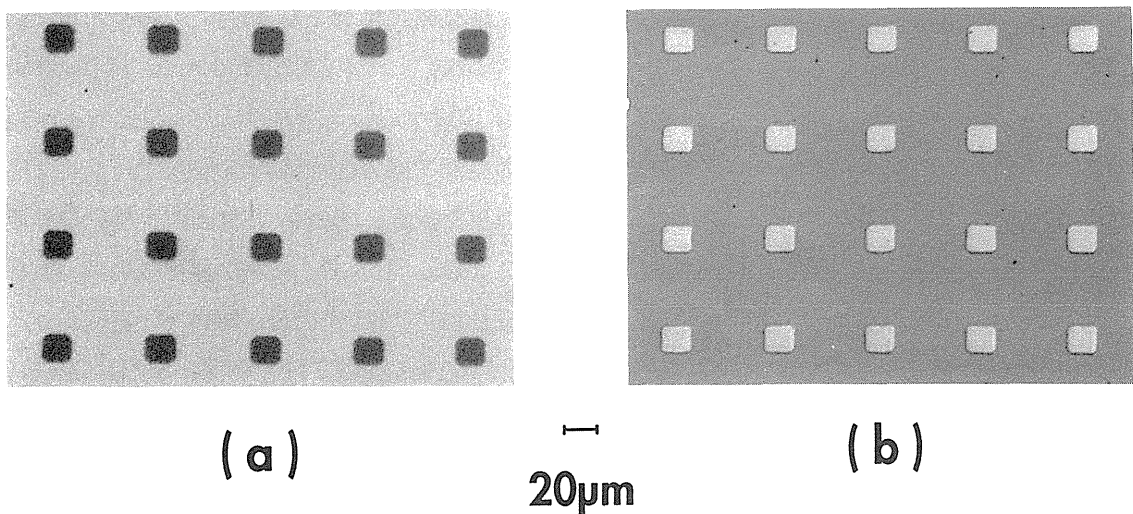


Fig.3 Photographs of 20 $\mu$ m square Al films obtained by (a) the inverse projection patterning on a Si surface and (b) the projection patterning on a SiO<sub>2</sub> surface.

を敏感に反映するSR照射効果が見いだされた。つまり、清浄Si表面上ではSR非照射部でAlが成長し、照射部ではAlが成長しないネガ型の直接パターン転写が実現されている。逆に、SiO<sub>2</sub>表面上では照射部だけにAlが成長するポジ型パターン転写が実現されていることが分かる。

通常、Si上にSiO<sub>2</sub>膜がパターンニングされている基板上でのAlの熱CVDでは、Si上だけにAlが成長する選択成長が実現できることが知られている<sup>8-10)</sup>。この選択性発現機構は次のように理解されている。Si表面は化学的に活性なために純粋な熱反応でAlの成長が可能であるが、SiO<sub>2</sub>表面は不活性なために同じ温度条件では熱CVD反応が生じない。ところが図3に示されているSR照射効果は、Si表面での成長を抑制し、SiO<sub>2</sub>表面での成長を誘起している。つまり、SR照射効果は、純粋な熱CVDで見られる選択性を逆転させる効果であると言え替えることができる。

#### 4. 反応制御機構

前節で述べたような、SR照射によって熱CVD反応が制御できる現象に興味を持ち反応機構の解明を進めた。

はじめに図3(a)で見いだされた清浄Si表面上で

のCVD反応抑制効果の場合について述べる。抑制効果の発現機構のモデルとして次の3つを考えることができる。

- (I) Si表面上への反応抑制層の形成
- (II) SR励起光刺激脱離によるDMAH分子、または、反応中間体の脱離
- (III) SR励起光電子放出、または、電子・正孔対生成で誘起される表面光電圧効果<sup>11, 12)</sup>によるDMAH分子の吸着阻害

これらのうちのどれがもっともらしいモデルかを明らかにするために、オージェ電子分光法(AES)による表面分析、SR照射とDMAH供給の時間、および、これらの時間的なシーケンスを変える多くの実験を行った。その結果、以下3つの重要な実験事実を見いだした。

- ① SR照射による抑制効果は熱CVD初期の照射で十分であり、この効果は光照射停止後も持続する。
- ② SR照射部の表面組成をAESで分析するとAlとCからなる層が存在する。基板のSiのオージェ電子の脱出深さから見積ると、この層は2nm以下の薄いものである。
- ③ AlLVVのオージェ電子スペクトルのケミカルシフトから、図4(a)に示すように、AlとCから

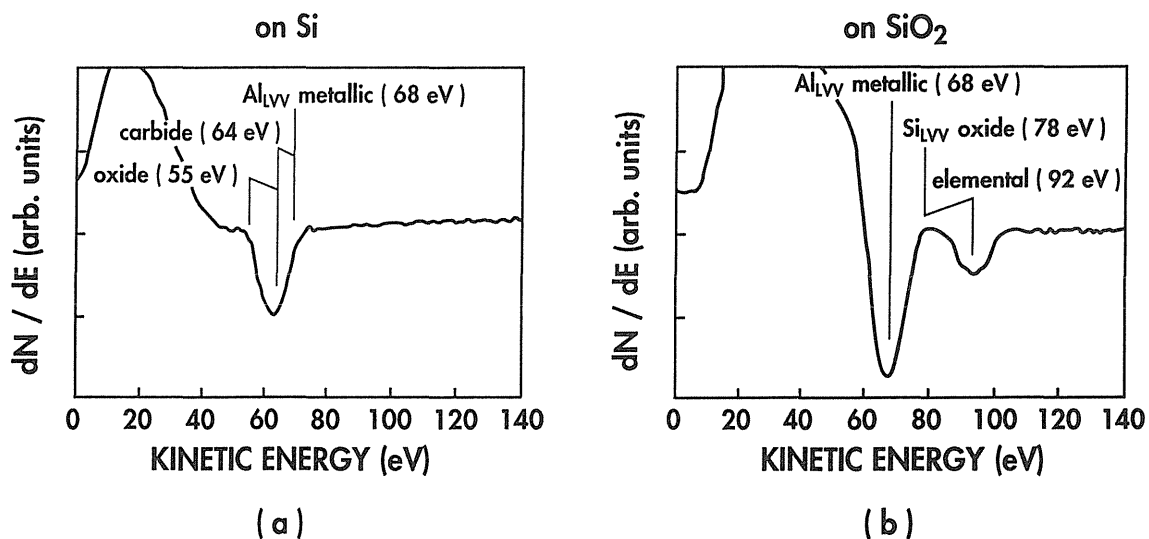


Fig.4 AES spectra of the SR irradiated surface below electron energy of 140 eV on (a) a Si surface and (b) a SiO<sub>2</sub> one.

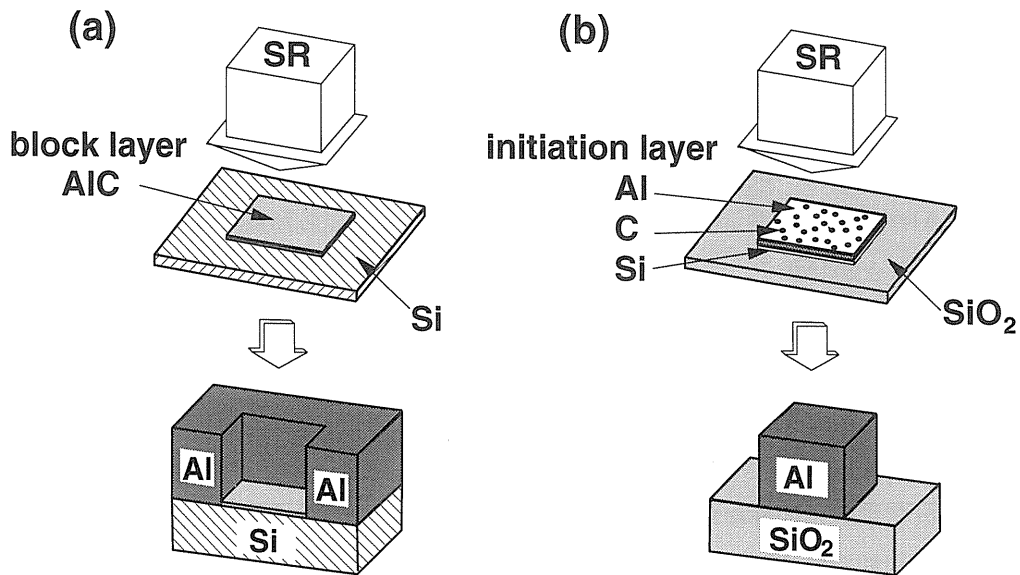


Fig.5 Schematic models of (a) SR induced inverse projection patterning of Al on a Si surface and (b) normal one on a SiO<sub>2</sub> surface.

なる層は炭化アルミニウム (AlC) である。

これらの実験事実のうち、①から抑制効果の発現機構は(I)であることが解る。しかも、反応抑制層は、②と③の実験事実から、SR励起表面光化学反応によって形成される原子層オーダのAlC層であることも明らかになった。このモデルを図示すると図5(a)のようになる。

次に図3(b)のSiO<sub>2</sub>表面上でのCVD反応の誘起効果の場合について述べる。この場合にも抑制効果の場合と同様な議論をすることができる。誘起効果のモデルとして次の2つが考えられる。

(IV) SR照射によるSiO<sub>2</sub>表面上へのAl熱CVD反応誘起層の形成

(V) SR照射による純粋な光化学反応によるAl膜成長

これらのうちどちらがもっともらしいモデルであるかを明らかにする上で次の3つの実験事実がある。

④ SR照射による誘起効果は熱CVD初期の照射で十分であり、この効果は光照射停止後も持続する。誘起効果発現後は、光を切っても同等かそれ以上の成長速度を持つ。

⑤ SR照射部の表面組成をAESで分析するとAlと

Cからなる層が存在する。基板SiO<sub>2</sub>のSiのオーージェ電子の脱出深さから見積もると、この層は0.5nm以下の薄いものである。

⑥ AlLVVのオーージェ電子スペクトルのケミカルシフトから、図4(b)に示すように、Alは金属状態のそれである。また、SiLVVはSiO<sub>2</sub>のそれであるにもかかわらず、還元されて元素状態の92eVの値を持っている。

これらの結果から誘起効果は(IV)のモデルで発現していることが解る。また、反応誘起層はSR励起表面光化学反応によって形成される原子層オーダの金属状態のAl層と、還元された元素状態のSi層であることも明らかになった。Al層とSi層のどちらが誘起効果を発現させるかについては、はっきりしないが、Si上ではSR照射によって抑制効果が現れるので、金属状態のAl層によって誘起効果が引き起こされると考えている。また、Al層中に含有されるCの構造はこれまでのところ明かになっていないが、AlCを形成しているのではなく、グラファイトや有機物などの安定な構造を持っているのではないかと考えている。誘起効果発現のモデルを図示すると図5(b)のようになる。

## 5. 励起波長依存性

SR励起表面光化学反応によって形成される原子層オーダの薄膜（以下、修飾層と記す）は、形成される基板の性質によって、抑制・誘起の両効果を持つ。一方、レーザやランプを用いた紫外線領域では表面に核を形成することによって熱CVDを誘起する研究が報告されている<sup>13-18)</sup>。これらの報告では、同じDMAHを原料とするAlのCVDであるにもかかわらず、Si表面上でもSiO<sub>2</sub>表面上でも誘起効果を用いるポジ型のパターンニングしか報告されていない。それぞれの実験で基板処理方法やCVD条件が異なるものの、最大の違いは使用している光の波長域と考えられる。そこで、前節で述べた抑制効果と誘起効果の励起波長依存性を調べた。

はじめに清浄Si表面上での抑制効果の場合について述べる。図6(a)に抑制効果の大きさの励起光エネルギー依存性を、(b)に修飾層のAILVVケミカ

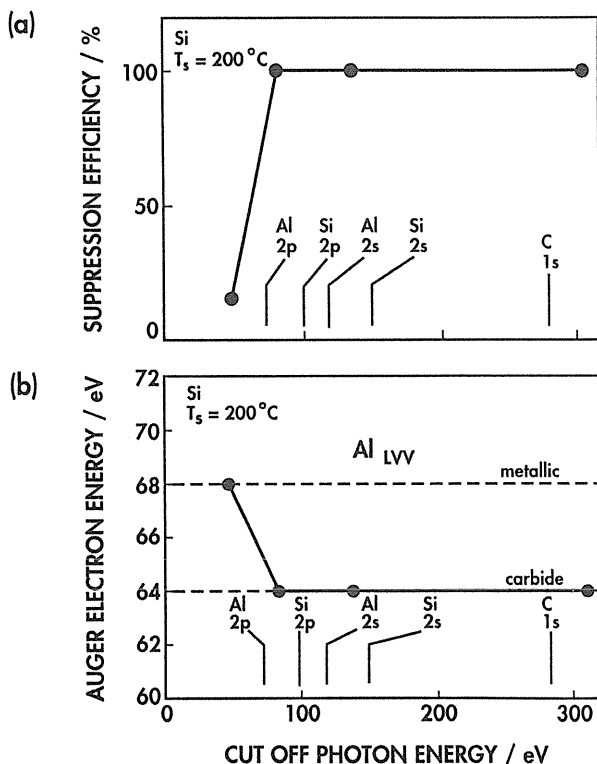


Fig.6 Photon energy dependence of (a) the degree of the SR induced growth suppression effect and (b) the Al LVV chemical shift of the suppression layer on a clean Si surface.

ルシフトのそれを示す。横軸は表1の各分光モードにおける高エネルギー限界値を示す。したがって、各データ点は横軸の値よりも低エネルギー側の全てのエネルギー領域の光が照射されていることを意味している。また、関連する元素の内殻電子準位のエネルギーレベルを参考として図中に示した。

図6(a)の結果からCVDの抑制は内殻電子励起領域で100%であり、価電子励起領域では10%以下で小さい。最も浅い内殻準位のAl2pの励起でさえCVD反応は完全に抑制されている。これらのことからCVD特性に明瞭な励起波長依存性があることが解った。

このような抑制効果の励起波長依存性の原因を探るために修飾層の化学結合状態の波長依存性をAILVVケミカルシフトを用いた調べた。結果を図6(b)に示す。内殻電子励起領域の光で形成された修飾層は、AILVVのケミカルシフトが64eVにあり、AICであることが分かる。また、価電子励起領域の光で形成された修飾層では金属状態の68eVにAILVVのケミカルシフトがあり、金属状態のAlが形成されていることが分かる。このケミカルシフトの励起光エネルギー依存性は(a)の抑制効果が大きさとよい対応関係がある。つまり、AICの修飾層が形成されるのは内殻電子励起領域であり、この領域で抑制効果が完全に起こっている。金属Alの修飾層が形成されるのは価電子励起領域であり、この領域では抑制効果はきわめて小さい。このような修飾層の化学結合状態が内殻電子励起と価電子励起とで異なることが、CVD反応の抑制効果の励起光エネルギー依存性の原因であることが明らかになった。

次にSiO<sub>2</sub>表面上での誘起効果の励起波長依存性について述べる。図7(a)に抑制効果の大きさの励起光エネルギー依存性を、(b)に修飾層のAILVVケミカルソフトのそれを示す。●印は90分のCVD時間のうち、はじめの10分間だけSRを照射した場合のデータであり、▲印は90分のCVD時

間中SRを継続して照射した場合のデータである。

図7(a)の結果から分かるように、SR照射時間10分の場合はいずれの波長領域でも誘起効果だけが観測される。照射時間10分というのは、CVD誘起効果が最も大きくなるように最適化された時間である。一方、照射時間90分の場合、内殻電子励起領域では誘起効果に混じって抑制効果も観測されている。ところが、価電子励起領域では誘起効果だけが生じている。このことから誘起効果だけを純粋に発現させるためには価電子励起が有効であることがわかる。

SR照射時間10分で形成される修飾層のAILVVケミカルシフトの励起波長依存性と、90分の場合のその結果が同図(b)である。照射時間10分の場合、いずれの波長でも修飾層は金属状態のAlである。90分の場合には、内殻電子励起では修飾層はAICであり、価電子励起では金属状態のAlで

ある。これらの結果は同図(a)のそれとよく対応している。つまり、照射時間10分の場合、いずれの波長領域でも金属状態のAlの修飾層が形成されるので熱CVDが誘起される。一方、照射時間90分の場合、AICの修飾層が形成される内殻電子励起領域では誘起効果に混じって抑制効果が観測され、金属状態のAlの修飾層が形成される価電子励起領域では誘起効果だけが観測される。

90分のSR照射で抑制効果と誘起効果が混在するのは、以下のようにして説明することができる。10分のSR照射によって金属状態のAlの修飾層が形成されると、この上に熱CVDが誘起されてAlの成長がはじまる。この段階では図(a)の●印のように光エネルギー依存性は観測されていない。しかし、一度Alの成長がはじまると、Al上のAlの熱CVD反応が生じる。この段階で内殻電子励起によってAICの修飾層が形成されると、▲印のように、このAIC層の作用でAlの成長の抑制効果が発現する。つまり、CVD反応の誘起後に抑制効果が生じることになる。

以上のことから、SiO<sub>2</sub>表面上のSR照射によるAl熱CVD反応誘起効果の励起波長依存性の機構は以下のように述べることができる。SRをCVDの初期だけ照射した場合、光エネルギーによらずにSiO<sub>2</sub>表面上に金属状態のAlが形成され、誘起効果だけが観測される。ところが、Alの成長が進むと、表面はSiO<sub>2</sub>からAlに変化し、Al表面上での熱CVD反応へと反応様式が変化する。この段階では内殻電子励起領域の光照射ではSi表面と同様にAICが形成されるために抑制効果も発現する。価電子励起では金属状態のAlが形成されるために抑制効果は生じず誘起効果だけが観測される。

## 6. ネガ・ポジ型パターン転写の発現制御

SR照射によるCVD反応の抑制・誘起効果を発現させた表面は、ここまではSi、SiO<sub>2</sub>、およびCVD進行後のAlといった単純な表面を対象にしてきた。これらの中でSi表面は化学的に活発な

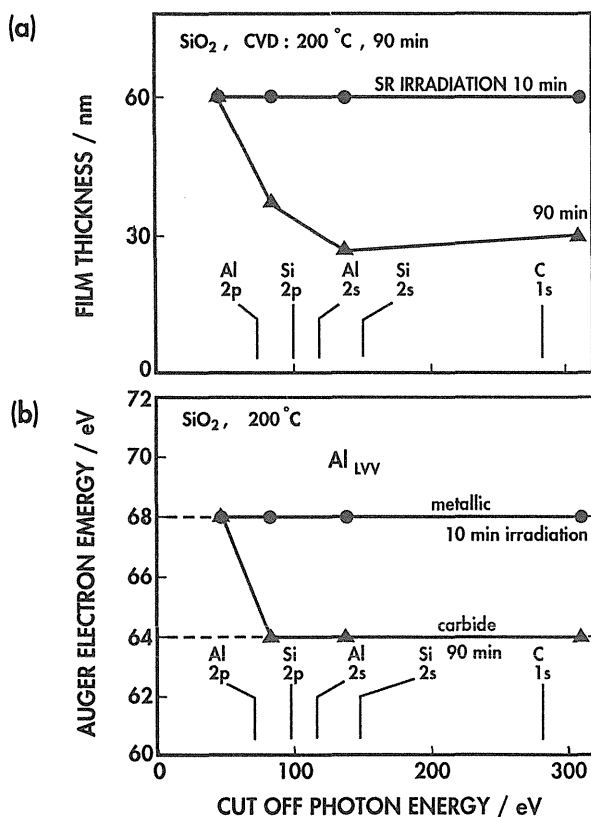


Fig.7 Photon energy dependence of (a) the degree of the SR induced growth initiation effect and (b) the Al LVV chemical shift of the initiation layer on a SiO<sub>2</sub> surface.

め、表面が自然酸化膜や有機物で汚染されやすいといった現象が知られている。これを防ぐ方法の1つとして、HF水溶液への浸漬によって水素で表面を終端する方法が有効であることが見いだされ、表面の清浄化方法として研究が行われている<sup>19)</sup>。

表面の化学的活性度の観点から見ると、水素終端によって清浄Si表面のそれを低めていると考えることができる。実際に、純粋な熱CVDによるAl膜の成長開始温度を比較すると、清浄Si表面では150°C以上で、SiO<sub>2</sub>表面では400°C以上で生じる。ところが、水素終端されたSi表面(H-Si表面)ではこれらの中間の温度の225°C付近から成長がはじまることが実験的に解った。このことは、H-Si表面の化学活性度が清浄Si表面のそれとSiO<sub>2</sub>表面のその中間の大きさを持っていることを示している。

したがって、H-Si表面上の場合、150°C~225°Cの温度領域では熱CVDは起こらないが、SiO<sub>2</sub>表面上の場合と同様にSR照射によって表面を活性化できればAlの熱CVDを誘起できる可能性がある。一方、225°C以上の温度では熱CVDによるAlの成長が生じるので、SR照射による成長抑制が期待できる。つまり、Si表面を水素終端して化学活性度を抑制し、基板温度と励起成長を選択すると、CVD反応の抑制と誘起の両効果の発現を制御できることが期待される。

そこで、はじめにH-Si表面上で熱CVDが生じる275°CでのCVD抑制を試みた。内殻電子励起領域の光照射によって、図8(a)に示すように抑制効果を発現させることができ、ネガ型のパターン転写を実現できた。このパターン転写の実験では図3の場合とは異なりライン&スペースのマスクを用いている。

全体が楕円形に見えるのはDMAH分子線を用いて基板に斜めに照射しているからである。白く見える部分が成長したAl膜である。なお、価電子励起領域の光のみを用いた実験では抑制効果を発現させることはできなかった。

次に、H-Si表面上では熱CVDが生じない175°CでのCVDの誘起を試みた。この場合は、価電子励起領域の光照射によって、図8(b)に示すように、期待どおりに誘起効果を発現させることができ、ポジ型のパターン転写を実現できた。内殻電子励起領域の光照射ではこの効果は発現しなかった。

このように、SR照射によって生じる抑制・誘起効果は、固体表面での吸着分子の化学反応を表面、励起波長、温度の3つの要因を独立に制御することによって、その発現を制御できることが解った。

## 7. 表面光修飾CVD

我々がここで見いだした現象とそれを用いた選

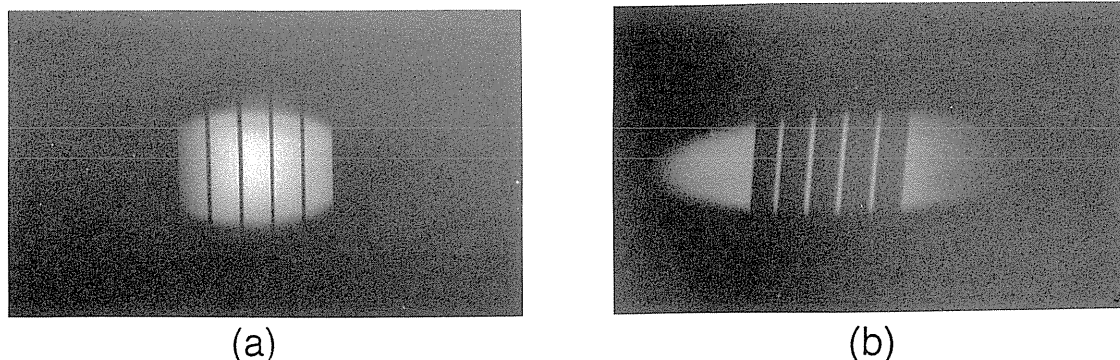


Fig.8 Photographs of Al films on a hydrogen-terminated Si surface obtained by (a) inner shell electron excitation at 275°C and (b) valence electron excitaton at 175°C.



択CVDは、図5の反応モデルに示したように、SR励起表面光化学反応で形成された原子層オーダの修飾層によって引き起こされている。そこで、我々はこのCVD方法を表面光修飾CVDと呼んでいる。この方法は応用上の観点から見た場合、以下に述べるような利点を持っている。

光CVDによる直接パターン転写は、煩雑なレジスト工程を省略して直接パターン化された薄膜を成長できる大きな利点がある。これまでも多くの研究例があり<sup>20)</sup>、レーザ直描などでは実用化まで進んでいるものもある<sup>21)</sup>。しかし、一方ではパターン分解能や成膜速度の点で限界もある。前者は気相励起による周辺堆積や光の回折に起因している。これに対してここで述べたSRによる表面光修飾CVDは、純粋な表面反応を利用しているため周辺堆積の寄与は少ない。さらに、極短波長光のSRを用いているため、原理的分解能限界は非常に高いことが予想される。一方、後者の成膜速度の限界に対しては、本方法では膜の成長に熱反応を用いているので、高い成長速度が期待できる。このように、本方法は光CVDと熱CVDの双方の利点を活かしたCVD方法として特徴がある。

応用技術としてみた場合の現状は、現象が見いだされて原理的な可能性が示された段階であるが、極短波長域での縮小転写光学系の開発が進めば、有望なパターン形成技術として発展する可能性を有していると考えている。

## 8. まとめ

DMAHを原料とするAlの熱CVDにおいて、SR照射によってCVD反応を制御できる現象を見いだした。この現象の発現機構はSR励起表面光化学反応によって形成される原子層オーダの表面修飾層の作用によることを明らかにした。修飾層の作用が抑制・誘起のどちらの効果として発現するのかを決める要因として、励起波長、表面、温度

が重要であることを示した。

これらの3要因を独立に制御することによって、同一基板上でCVD反応の抑制・誘起の発現を制御できることを示した。さらに、これらの効果を用いると、レジスト工程を用いない直接パターン転写が可能であることを示した。

## 文献

- 1) M. L. Knotek and P. J. Feibelman, *Phys. Rev. Lett.*, **40**, 964 (1978).
- 2) J. Murakami, M. C. Neleson, S. L. Anderson and D. H. Hanson, *J. Chem. Phys.*, **85**, 5755 (1986).
- 3) F. Uesugi and I. Nishiyama, *Appl. Surf. Sci.*, **54**, 284 (1992).
- 4) F. Uesugi and I. Nishiyama, *Appl. Surf. Sci.*, **62**, 151 (1992).
- 5) F. Uesugi and I. Nishiyama, *Appl. Surf. Sci.*, **60/61**, 587 (1992).
- 6) F. Uesugi and I. Nishiyama, *IEICE Trans. Electron.* **E76-C**, 47 (1993).
- 7) F. Uesugi and I. Nishiyama, *Appl. Surf. Sci.*, **79/80**, 203 (1994).
- 8) T. Shinzawa, K. Sugai, S. Kishida and H. Okabayashi, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc. VLSI V*, p.377 (1990).
- 9) H. Kawamoto, H. Sakaue, S. Takehiro and Y. Horiike, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **29**, L2657 (1990).
- 10) K. Tsubouchi, K. Masu, N. Shigeeda, T. Matano, Y. Hiura and N. Mikoshiba, *Appl. Phys. Lett.*, **57**, 1221 (1991).
- 11) M. Alonso, R. Cimino and K. Horn, *Phys. Rev. Lett.*, **40**, 964 (1978).
- 12) S. G. Andersen, T. Komeda, J. M. Seo, C. Capasso, G. D. Waddill, P. J. Benning and J. H. Weaver, *Phys. Rev.* **B42**, 5082 (1990).
- 13) T. Cacouris, G. Scelsi, P. Shaw, R. Scarmozzio and R. Osgood, Jr., *Appl. Phys. Lett.*, **52**, 1865 (1988).
- 14) M. Hanabusa, K. Haytakawa, A. Oikawa, and K. Maeda, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **27**, L1392 (1988).
- 15) M. Hanabusa, A. Oikawa, and P-Y. Cal, *J. Appl. Phys.*, **66**, 3268 (1989).
- 16) G. S. Higashi, *Appl. Surf. Sci.*, **43**, 6 (1989).
- 17) K. Sahara, H. Ouchi and M. Hanabusa, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **30**, 1545 (1991).
- 18) N. Zhu, T. Cacouris, R. Scarmozzio and R. Osgood, Jr., *J. Vac. Sci. Technol. B.*, **10**, 1167 (1992).
- 19) 高萩, *応用物理*, **59**, 1441 (1990) and references therein.
- 20) D. J. Ehrlich, R. M. Osgood, Jr. and T. F. Deutsch, *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-16**, 1233 (1980) and references therein.
- 21) S. Kishida, Y. Morishige, F. Uesugi, H. Yokoyama, T. Mizuno, S. Masuda and K. Matsumoto, *Technical Digest, Cleo'87 paper FD6*.