

STM リソグラフィによるシリコンダングリングボンド 細線の形成とその装飾

櫻井 亮^{*,**}・Carsten THIRSTRUP^{*,**}・青野正和^{*,**,***}

^{*}理化学研究所 ☎ 351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1

^{**}科学技術振興事業団戦略的基礎研究推進事業 ☎ 102-0081 東京都千代田区四番町 5-3

^{***}大阪大学工学研究科精密科学専攻 ☎ 565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1

(1998 年 8 月 25 日受理)

Formation of Silicon Dangling Bonds Using STM Lithography and Its Decoration

Makoto SAKURAI, Carsten THIRSTRUP and Masakazu AONO

^{*}The Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN), 2-1 Hirosawa, Wako, Saitama 351-0198

^{**}Core Research for Evolutional Science and Technology (CREST) Program, Japan Science and Technology Corporation (JST)
5-3 Yonban-cho, Chiyoda-ku, Tokyo 102-0081

^{***}Department of Precision Science and Technology, Osaka University, 2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871

(Received August 25, 1998)

Atomic scale desorption and deposition of hydrogen (H) atoms on H-terminated Si(001) surfaces by a scanning tunneling microscope (STM) have been studied. Hydrogen atoms are extracted at either polarity of sample bias voltage. Desorption rate of H atoms shows a power-law dependence on tunnel current (I). When H atoms are locally extracted from a Si(001)-(3×1)-H surface, the dihydride rows partly disappear and instead new monohydride rows appear. Opposite local phase transition from 2×1 structure to 3×1 structure is also observed using H covered tips. Silver (Ag) growth on a pre-patterned Si(001)-(2×1)-H surface has been studied. An isolated dangling bond site can be occupied by an isolated single Ag atom or a 3-dimensional Ag cluster. On a wire of dangling bonds, Ag grows layer-by-layer along the wire.

1. はじめに

Binnig と Rohrer ら¹⁾によって発明された走査型トンネル顕微鏡 (STM) は、表面構造の観察にとどまらず、表面での原子操作をも可能にし^{2,3)}、原子スケールで構築されたデバイスを実現する道を拓きつつある。原子操作のための STM の特徴は、1) 任意の場所で、近接効果が効く距離まで精度よく探針を試料に近づけることができる、2) 局所的に強い電界を印加することができる、3) 局所的に大きな電流密度の電流を流すことができるなどである。水素で終端された Si(001) 表面から STM を用いて水素原子を局所的に引き抜くことが Lyding ら⁴⁾

によって示されたが、これは局所的な強電界とトンネル電流の効果を利用したものである。その後、水素終端 Si(001) 表面から水素原子を引き抜く研究は実験と理論の両面から精力的に続けられ、数多くの興味深い結果が得られている⁵⁻¹⁰⁾。

水素終端 Si(001) 表面は、作成条件によって (2×1)、(1×1)、(3×1) 構造をもつ¹¹⁾。(2×1) 構造は、表面の隣接した 2 個のシリコン原子が互いに結合して形成された 2 量体 (ダイマー) の各々のシリコン原子に水素原子が 1 個ずつ吸着したモノハイドライド (monohydride) からなる。(1×1) 構造は、各々のシリコン原子に 2 個の水素原子が結合したダイハイドライド (dihydride) からなる。(3×1) 構造は、ダイハイドライドの列とモノハイドライドの列が交互に並んだ構造である。このよう

E-mail: msakurai@postman.riken.go.jp

な構造のSTM像は塚田らのグループによって理論的に研究されており¹²⁾, 実際のSTM像と良く一致する。水素原子の引き抜きの研究はこれら3つの構造のうち主に(2×1)構造に対して行われている。

水素終端Si(001)表面から水素原子を引き抜くと、そこにシリコンのダングリングボンドが現れる。作成されたダングリングボンドの特性は、STMのスペクトロスコピー¹³⁾やSTMによる光放出¹⁴⁾の実験によって研究され、前者の方法によって得られたダングリングボンド細線の電子状態は、第1原理計算の結果¹⁵⁾と良く一致している。また、ダングリングボンドは、水素終端された領域に比べて外来原子の吸着に対する活性が高いため、そこに外来原子を選択吸着させることができる。酸素¹⁶⁾, ガリウム⁸⁾, 鉄¹⁷⁾, アルミニウム¹⁸⁾, 銀¹⁹⁾の原子を吸着させたナノ構造の構築が報告されている。ダングリングボンドの列にガリウムやヒ素を吸着させた細線は強磁性を示すかも知れないとの理論的報告もなされている¹⁰⁾。

本稿では、水素終端Si(001)表面にシリコンのダングリングボンドの細線を再現性よく作成する条件²⁰⁾, そのダングリングボンド細線への銀原子の吸着の特性¹⁹⁾, 水素終端Si(001)表面とSTM探針との間で水素原子がやりとりされることによる表面の構造相変態^{21, 22)}について、最近の実験結果を中心に紹介する。

2. 実験

超高真空STM(日本電子JSTM-4000 XV)を用いて実験を行った(到達真空度は 1×10^{-8} Pa)。STMの探針は、直径0.25 mmのW線を1モルのKOH溶液でエッチングして作製した。試料は、n型Si(001)ウエハー(Sbドーパ; 1×10^{18} cm⁻³)を用いた。超高真空中において1500 Kに数回加熱してSi(001)清浄表面を作成した。試料から2~3 cmの距離に配置した1800 K程度に加熱したタングステン(W)フィラメントを用いて、真空チャンバーに導入した水素ガス分子を水素原子に解離し、それを清浄表面に吸着させた。水素ガス圧は $\sim 1 \times 10^{-4}$ Paで、約5分間で表面は水素終端化された。(2×1)構造を作成する場合の基板温度は600 K、(3×1)構造の場合は400 Kであった¹¹⁾。

様々な正負の試料バイアス(V_s)とトンネル電流(I_t)の条件の下でSTM探針を試料表面に平行に走査し、水素原子の引き抜きを行った。高温での実験は、試料を通電加熱して行ったが、通電加熱のために加えた電圧が試料の測定位置での試料バイアスを変化させる効果は正しく校正した。

水素原子の引き抜きによって形成されたシリコンのダ

ングリングボンドへの銀(Ag)の蒸着は、試料表面に対して45°の方向に置かれた蒸着源を用いて、約0.035 ML/min ($1 \text{ ML} = 6.8 \times 10^{14} \text{ atoms/cm}^2$)の蒸着速度で室温において行った。このとき、STM探針の影を避けるため、探針を試料から100 nm程度ほど引き離れた。蒸着の後、再び探針を近づけ、同じ領域を観察した。

なお、本稿で示すSTM像はすべて $V_s = -2 \text{ V}$, $I_t = 0.2 \text{ nA}$ の条件で得た定電流トポグラフ像である。

3. 実験結果と考察

3.1 シリコン・ダングリングボンド細線の形成

Fig. 1 (a) は、Si(001)-(2×1)表面の構造を示す。最表面の隣接するシリコン原子が2個ずつ結合してダイマーを形成し、シリコンのsp混成軌道の未結合手(ダングリングボンド)が表面に現れている。Fig. 1 (b) は、その表面を水素終端した結果である。ダイマーを形成するシリコン原子1個につき1個の水素原子が結合し、(2×1)構造が形成される。表面にダングリングボンドがないため、安定な構造である。この表面に平行にW探針を走査し、水素原子を引き抜いた。Fig. 1 (c) は、探針をダイマー列の片側の水素原子列に沿って走査し、片側の水素原子を引き抜いて作成したダングリングボンド細線の模式図である。Fig. 1 (d) は、ダイマー列の中央に沿って探針を走査し、両側の水素原子を引き抜いてダングリングボンド細線を作成した場合を示す。

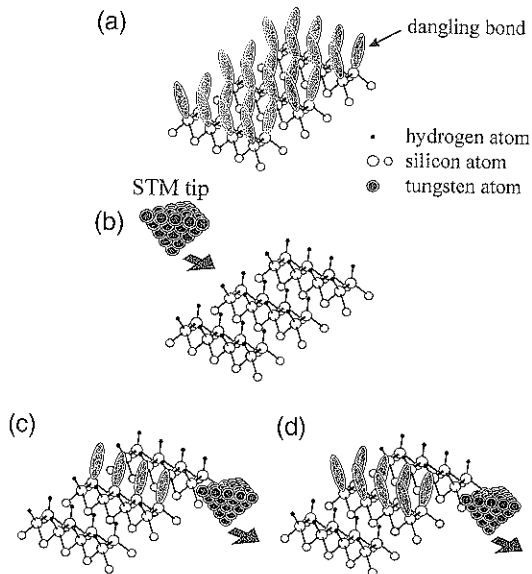


Fig. 1 Structures of the Si(001)-(2×1) surface (a) before and (b) after adsorption of H atoms and those of (c) single-line and (d) double-line Si dangling bond wires.

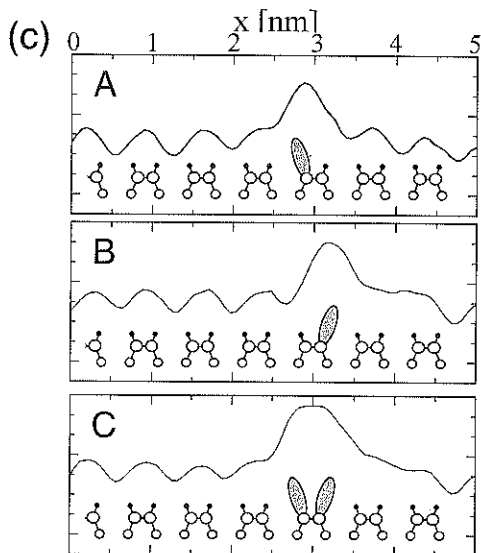
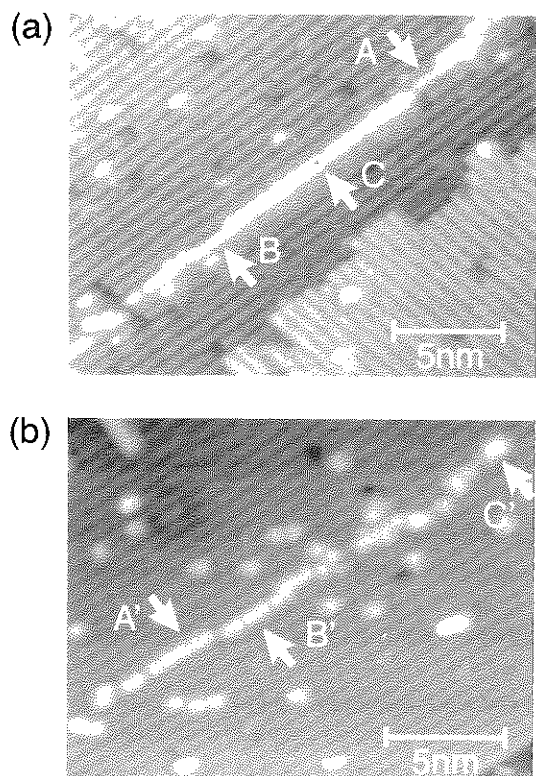


Fig. 2 (a) and (b): Filled state images of Si dangling bonds (bright spots) due to H desorption from the Si(001)-(2 × 1)-H surface. The dangling bonds were created at 300 K by scanning the STM tip along a dimer row at a speed of $v_t = 2$ nm/s and (a) $V_s = -7$ V and $I_t = 3.0$ nA and (b) $V_s = +3.5$ V and $I_t = 3.0$ nA. (c): Cross-sectional profiles of three different portions A, B, and C of the dangling bond wire shown in (a): (A) One H atom is desorbed from the left side of a dimer row; (B) One H atom is desorbed from the right side of a dimer row; (C) Two H atoms are desorbed from both sides of a dimer row. The corresponding structures are shown at the bottom of each figure.

Fig. 2 (a), (b) は、正負の試料バイアスにおいて探針を走査して水素原子を引き抜いて作成したダングリングボンド細線の STM 像である。水素原子を引き抜いた実験条件は、(a) では $V_s = -7.0$ V, $I_t = 3.0$ nA, (b) では $V_s = +3.5$ V, $I_t = 3.0$ nA, そして探針走査速度 (v_t) と基板温度 (T_s) は共に 2 nm/s, 300 K であった。いずれの試料バイアスでも探針を走査した線に沿って水素原子が引き抜かれ、ダングリングボンド細線が形成された。それが Fig. 2 (a), (b) の左下から右上に走っている明るい線である。水素原子が引き抜かれたにもかかわらず細線が明るく見えるのは、ダングリングボンドの π^* , π 状態による。これらの状態はそれぞれバンドギャップの上下端に位置し、Fig. 2 (a), (b) の観察条件 ($V_s = -2$ V) では、 π 状態からのトンネル電流が大きい。ダングリングボンドが水素原子によって終端されていると、 π^* , π 状態の代りに水素-シリコンの結合および反結合状態がバンドギャップからかなり離れた位置に現われ、それらは像観察条件でのトンネル過程にあまり寄与せ

ず、したがって、水素終端された領域はダングリングボンド細線の部分に比べて暗くなる。

Fig. 2 (a), (b) のダングリングボンド細線は、Fig. 1 (c), (d) に示した構造からなっている。Fig. 2 (a) の A, B, および Fig. 2 (b) の A', B' は Fig. 1 (c) に、そして Fig. 2 (a) の C および Fig. 2 (b) の C' は Fig. 1 (d) に対応する。これを明確にするため、Fig. 2 (a) の A, B, C の位置でダイマー列に垂直な断面像をとった結果を Fig. 2 (c) に示す。A と B では、片側の水素原子だけが抜けてダングリングボンドが形成されているので、断面像の極大部がダイマー列の中央からずれている。C では両側の水素原子が抜けているので、極大部はダイマーの中央部にあり、幅も広い。また、Fig. 2 (a) の C の部分をダイマー列に沿って見ていくと、ジグザグ構造が見られる。これは、Si(001)-(2 × 1) 表面でも見られるダイマー列の構造緩和 (バックリング) によるものと考えられる。ダングリングボンド細線の構造緩和は理論的にも指摘されている¹⁵⁾。

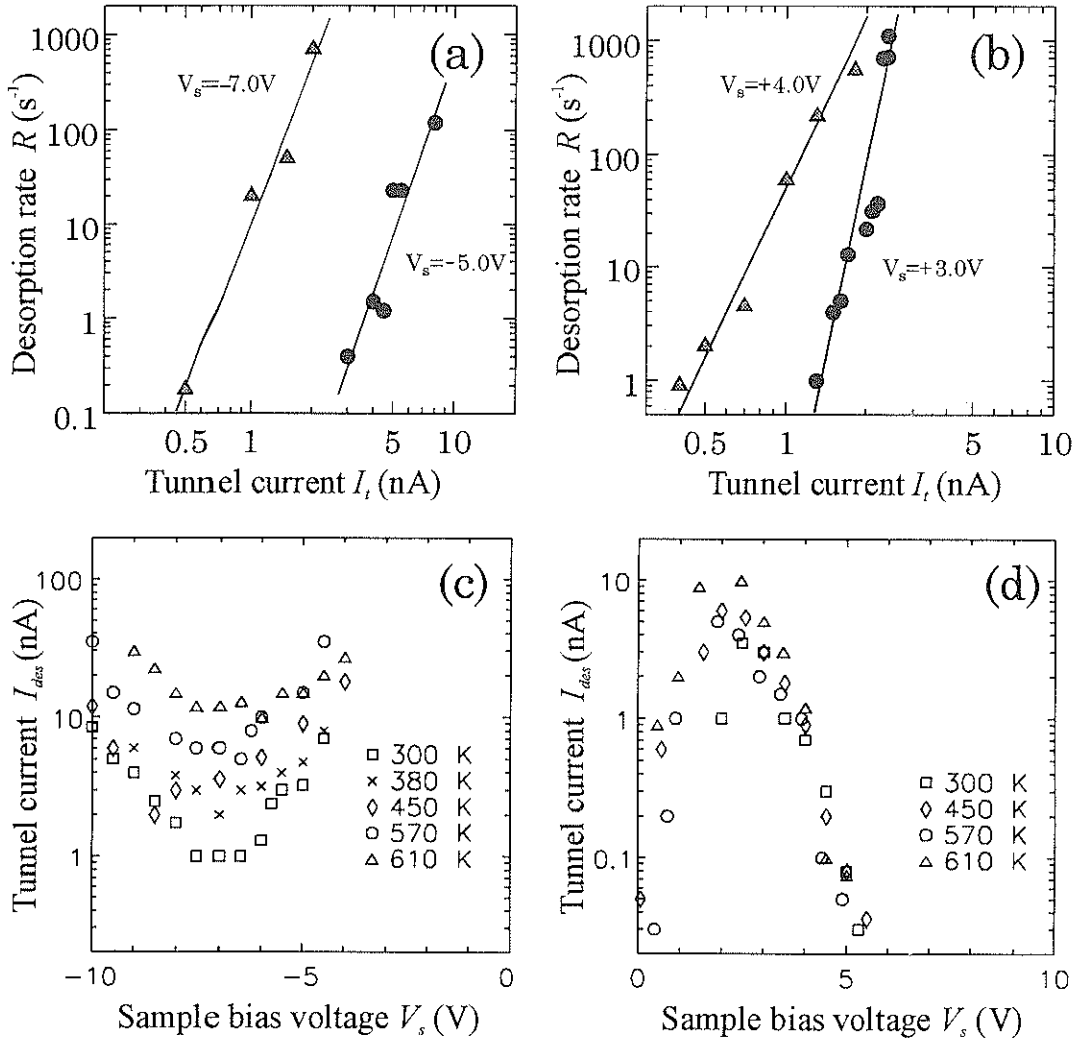


Fig. 3 STM induced desorption rate (R) of H atoms as function of tunnel current (I_t) for (a) negative and (b) positive sample bias voltages. The tunnel current (I_{des}) as function of (c) negative and (d) positive sample bias voltages (V_s) which give rise to 50% desorption of H from a Si(001)-(2×1)-H surface along a line scan of 2 nm/s by an STM tip. Results are plotted for temperatures of 300 K, 380 K, 450 K, 570 K, and 610 K.

STM 探針によって水素原子を引き抜くのに必要な条件を調べた²⁰⁾。Fig. 3 (a), (b) は、試料バイアス V_s を固定して、水素原子が脱離する率 (R) をトンネル電流 I_t の関数として測定したものである。 R は、ある領域から引き抜かれる水素原子の数を探針がその領域にある時間 (t) に逆比例) で割ったものとして定義される。Fig. 3 (a), (b) から、正負いずれの試料バイアスでも、 R はトンネル電流のべき乗で増加することがわかる^{20, 23)}。

Fig. 3 (c), (d) は、300 K~610 K のいくつかの基板温度で、試料バイアスを固定して、 R が 4 s^{-1} となるトンネル電流 (I_{des}) を求めたものである。 $R=4\text{ s}^{-1}$ は、

探針を $v_t=2\text{ nm/s}$ で走査した場合に水素原子が 50% 引き抜かれる条件に相当する。Fig. 3 (c) に示した負の試料バイアスでの結果は次の特徴をもつ。1) 各試料バイアスで、温度上昇に伴い I_{des} は増大する。2) I_{des} は $V_s=-7\text{ V}$ あたりに極小値を持つ。一方、Fig. 3 (d) に示した正の試料バイアスでの結果は次の特徴をもつ。3) I_{des} は温度にほとんど依存しない。4) I_{des} は $V_s=2.5\text{ V}$ あたりに極大値をもつ。詳細²⁰⁾は省略するが、このような温度依存性の結果は、電界の効果とトンネル電流の効果によって説明できる。

3.2 (2×1) 構造と (3×1) 構造の間での構造変化

Si(001)-(3×1)-H 表面から水素原子を引き抜く場合には、シリコンのダングリングボンドの形成のみならず、局所的な構造相変態が室温においても起こることがわかった。Fig. 4 (a) は水素原子を引き抜く前の Si(001)-(3×1)-H 表面の STM 像である。右上のテラスおよび左下のテラスに見られる列のうち、太くて暗い列はダイハイドライドの列、細くて明るい列はモノハイドライドの列

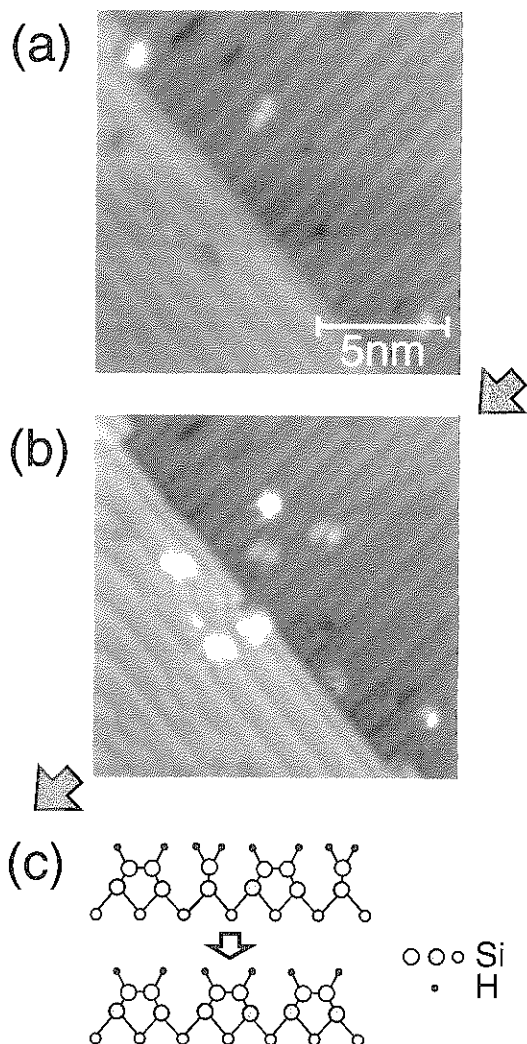


Fig. 4 An occupied-state STM images of Si(001)-(3×1)-H surface (a) before and (b) after a line scan of a STM-tip. The tip was scanned at $v_t=2$ nm/s, $V_s=-7.0$ V, $I_t=0.1$ nA, and $T_s=300$ K from the top right to the bottom left. The arrows in (b) show newly created monohydride rows. (c) Schematic diagram of phase transition process between (3×1) structure and (2×1) structure.

である¹¹⁾ (Fig. 4 (c) の上図を参照)。Fig. 4 (b) は、同じ領域の STM 像であるが、矢印で示した対角線に沿って探針を $V_s=-7$ V, $I_t=0.1$ nA, $v_t=2$ nm/s の条件で走査した後の像である。左上のテラスにおいても右上のテラスにおいても、走査した線に沿って、シリコンのダングリングボンドの形成の他に、部分的に新しいモノハイドライド列が現れていることがわかるであろう。この構造変化は、Fig. 4 (c) に模式的に示したように、(3×1) 構造から水素原子が抜き取られ、再構成によって (2×1) 構造が形成されたものである。

(3×1) 構造から抜き取られた水素原子はモノハイドライド、ダイハイドライドのどちらから抜き取られたかを明らかにする目的で、一定の試料バイアスの下で局所的に (3×1) 構造から (2×1) 構造へ変化させるために必要なトンネル電流の閾値 $I_t^{PT}(3\times 1)$ を測定した。モノハイドライドのみで形成される (2×1) 構造から水素原子を引き抜くために必要なトンネル電流の閾値 $I_t^{DH}(2\times 1)$ と比較すると、 $V_s=-7$ V では $I_t^{PT}(3\times 1) < I_t^{DH}(2\times 1)$, $V_s=-5$ V では $I_t^{PT}(3\times 1) \sim I_t^{DH}(2\times 1)$, $V_s=+5$ V では $I_t^{PT}(3\times 1) > I_t^{DH}(2\times 1)$ という結果が得られた²²⁾。試料バイアスによって 2 つの閾値の大小関係が変わる理由は、探針の下で加わる電界によって Si-H 結合の電子分布が変化し結合エネルギーが変化するはずであるが、その変化量はモノハイドライドとダイハイドライドで異なるためであると考えられる。熱脱離の実験から知られているはずであるが、ダイハイドライドはモノハイドライドよりも水素原子の結合エネルギーが小さいという事実²⁴⁾から単純には予測できない結果である。この機構を詳細に調べるためには電界を含めた第 1 原理計算が必要である。

Si(001)-(2×1)-H 表面の場合、水素原子を吸着した STM 探針から水素原子をその表面に供給すると、構造相変態が起こることがわかった。水素原子を STM 探針から局所的に試料に供給する例としては、倉持らによる水素雰囲気中での実験報告²⁵⁾がある。今回の実験では、水素終端された表面の上で W 探針をあらかじめ何度も走査し、水素原子をその探針に吸着させておいた²¹⁾。

Fig. 5 (a) は、探針を走査する前の Si(001)-(2×1)-H 表面の STM 像である。Fig. 5 (b) は同じ領域の STM 像であるが、矢印で示した対角線に沿って探針を $V_s=-9.5$ V, $I_t=10$ nA, $v_t=2$ nm/s の条件で走査した後の像である。試料温度は 450 K であった。この STM 像には白い矢印で示したように、ダイハイドライド列が局所的に現れている。この構造変化は、Fig. 5 (c) に示したように、水素原子が付与されたことによる。この構造変化は探針を走査した線から数 nm 離れた場所で起こっていること

に注意すべきである。これは以下のように説明できる。W 探針に吸着した水素原子は試料表面に供給されるが、その範囲は一般に探針直下から数 nm 離れたところまで及ぶ²¹⁾。いま問題にしている実験の条件では、そのような水素原子の供給のほか、水素原子の引き抜きもまた起こる。実際、Fig. 5 (b) では探針を走査した線に沿って水素原子の引き抜きが見られる。しかし、その引き抜きの率は Fig. 3 (c) に示したデータに比べて小さい。つまり、探針直下では引き抜きと供給とが同時に起こって互いに相殺するために構造変化は小さく、直下から離

れた領域では供給が上回るために構造変化が大きい。この構造変化は、負の試料バイアスで、特に 400 K 付近の試料温度で顕著に観察された。この温度は、 (3×1) 構造を作成するに適した基板温度¹¹⁾にほぼ等しい。局所的ダイハイドライドの形成にも (3×1) 構造の形成と同程

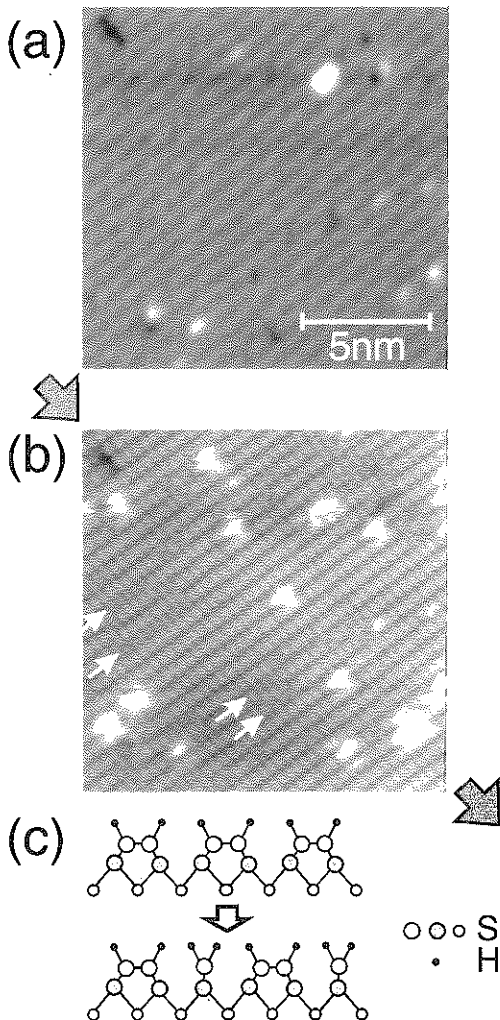


Fig. 5 An occupied-state STM images of Si(001)-(2 $\times$ 1)-H surface (a) before and (b) after a line scan of a STM-tip. The tip was scanned at $v_t=2$ nm/s, $V_s=-9.5$ V, $I_t=10$ nA, and $T_s=450$ K from the top left to the bottom right. (c) Schematic diagram of phase transition process between (2×1) structure and (3×1) structure.

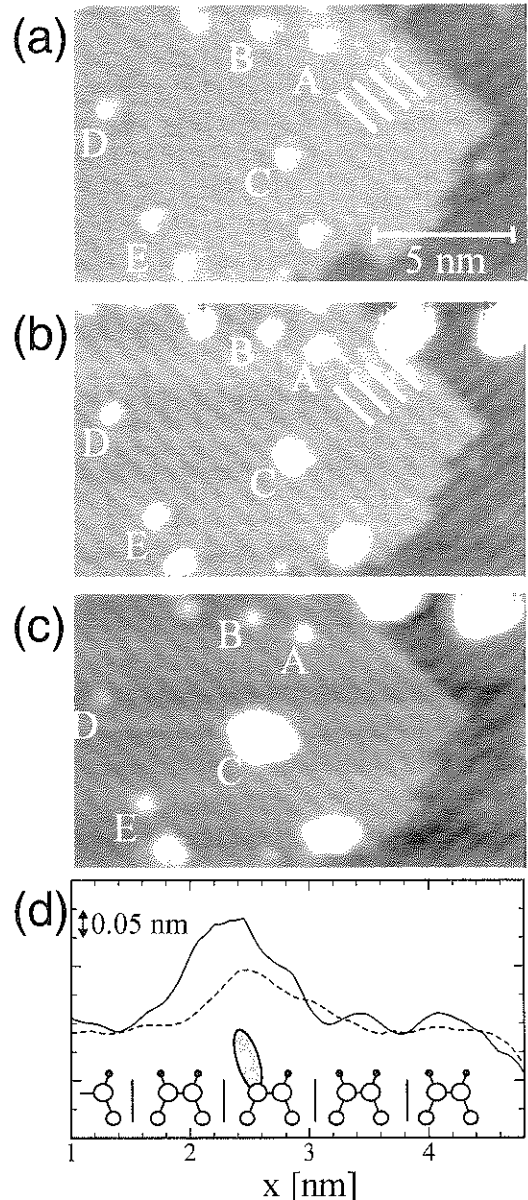


Fig. 6 (a) and (b): STM-images of the Si(001)-(2 $\times$ 1)-H surface with Si dangling bonds (a) before and (b) after deposition of Ag. (c): STM image taken after additional deposition of Ag. (d) Cross-sectional profiles of bright spot A in (a) (broken line) and that in (b) (solid line) perpendicular to the dimer rows.

度の熱エネルギーが必要であることを意味している。

3.3 銀の細線の形成

シリコンのダングリングボンドへの外来原子の選択吸着を明らかにする目的で、孤立した単一ダングリングボンドおよびダングリングボンド細線への銀原子の吸着を観察した¹⁹⁾。

Fig. 6 (a) は、孤立した単一ダングリングボンドが散在する Si(001)-(2×1)-H 表面の STM 像である。図中の白い輝点が単一ダングリングボンドで、その各々を区別するために A から E の記号を付した。Fig. 6 (b) は、銀を 0.14 ML だけ蒸着した後の同じ領域の STM 像であり、Fig. 6 (c) は、さらに 0.07 ML だけ蒸着した後の像である。Fig. 6 (a) の A のダングリングボンドを横切りダイマー列に直角な断面像を Fig. 6 (d) に破線で示した。破線の極大部がダイマーに対して非対称であることから、ダイマーの片方の水素原子が抜けたものであるこ

とがわかる。この構造を Fig. 6 (d) の下部に示した。Fig. 6 (d) の実線は、Fig. 6 (b) の A 位置を横切る断面像である。極大部はダイマー列とダイマー列との間にあり、高さは約 0.15 nm である。これは、1 個の銀原子がダイマー列の間に吸着したことを示している。この構造は Si(001)-(2×1) 清浄表面に銀原子が 1 個吸着した構造²⁰⁾に類似している。Fig. 6 (b) の B, D, E 位置でも同様の構造が観察された。一方、Fig. 6 (b) の C 位置の断面像は幅が約 2 nm、高さが約 1 nm である。これは銀原子がそこで 3 次元成長してクラスターを形成したことを示している。この銀クラスターは、Fig. 6 (c) でさらに大きくなっている。こうして、シリコンのダングリングボンドが銀の成長の核形成のきっかけとなった。Fig. 6 (c) の A, B, D, E 位置の断面像は、Fig. 6 (b) の場合とほぼ同じである。すなわち、これらの位置のシリコンのダングリングボンドに 1 個の銀原子が吸着した

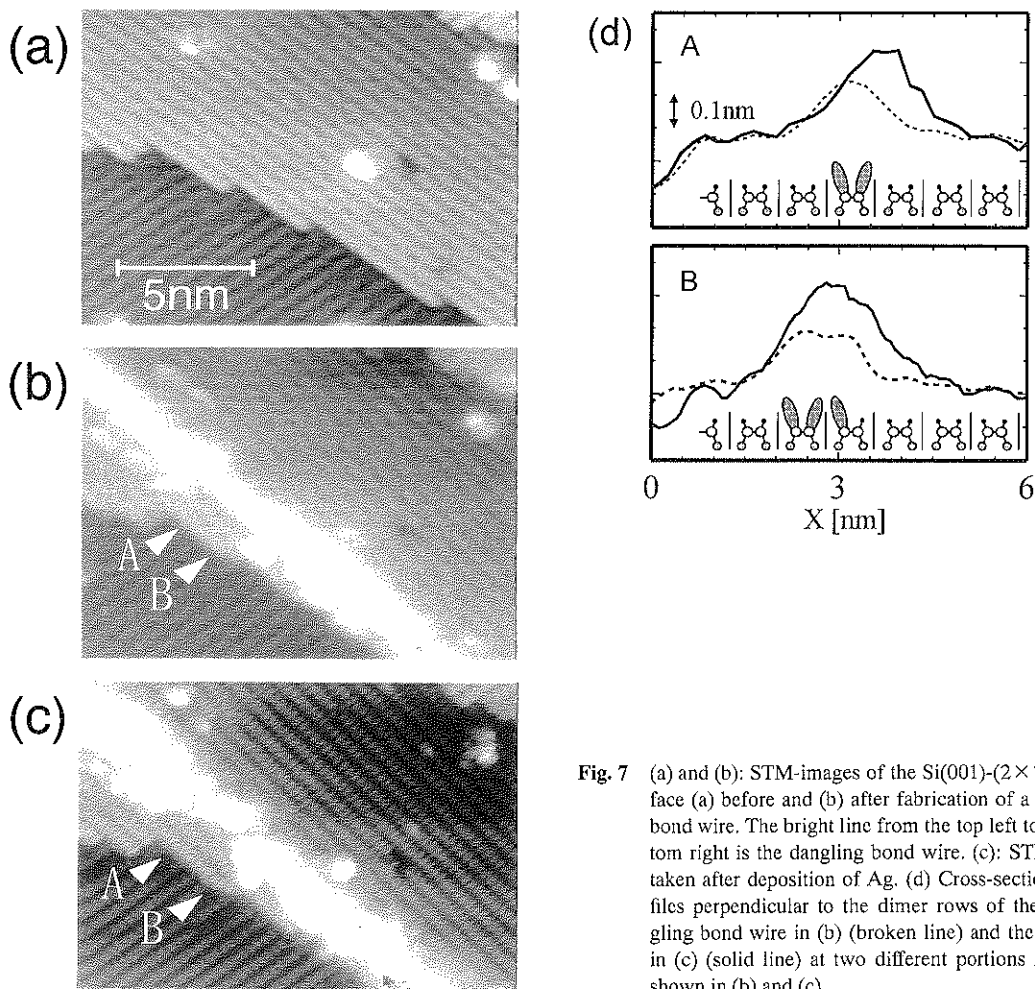


Fig. 7 (a) and (b): STM-images of the Si(001)-(2×1)-H surface (a) before and (b) after fabrication of a dangling bond wire. The bright line from the top left to the bottom right is the dangling bond wire. (c): STM image taken after deposition of Ag. (d) Cross-sectional profiles perpendicular to the dimer rows of the Si dangling bond wire in (b) (broken line) and the Ag wire in (c) (solid line) at two different portions A and B shown in (b) and (c).

構造は、実験範囲の銀の被覆量では銀の成長の核となっていない。

Fig. 7 (a) は Si(001)-(2×1)-H 表面の STM 像, Fig. 7 (b) は $V_s = +3.5$ V, $I_t = 2$ nA, $v_s = 2$ nm/s の条件で探針を走査してシリコンのダングリングボンド細線を作成した後の STM 像, Fig. 7 (c) はその表面に銀を蒸着した後の STM 像である。Fig. 7 (c) において, 銀の原子がダングリングボンド細線に沿って集合し, 銀の細線が成長していることがわかる。Fig. 7 (b) の矢印 A で指し示したダングリングボンドの部分はダイマー 1 列分の幅をもち, 矢印 B で指し示した部分は 1.5 列分の幅をもつ。A, B の部分の断面像を Fig. 7 (d) に破線で示し, 対応する構造を各々の下に示した。銀を蒸着した後の A, B の部分での断面像を Fig. 7 (d) に実線で示した。これからわかるように, A では銀原子はダングリングボンド細線と隣りの水素終端したダイマー列との間に吸着し, B ではダングリングボンド細線の上 (ただしシリコン原子との関係では A の場合と同じ位置) に吸着している。A, B いずれの場合も, その高さは約 0.15 nm である。この高さは, Fig. 6 (d) に示した銀原子が 1 個吸着した場合の高さとほぼ等しいので, 1 層の銀原子に相当すると考えられる。詳細は省略するが, Fig. 7 (c) に見られる銀の細線は, どの場所でも層状に成長した銀原子からなることがわかる。

4. ま と め

Si(001)-(2×1)-H 表面から正負の試料バイアスで水素原子を引き抜くことができる。一定の試料バイアスの場合, 水素原子が引き抜かれる率はトンネル電流のべき乗で増加する。Si(001)-(3×1)-H 表面の水素原子を引き抜くとき, 室温でも (3×1) 構造から (2×1) 構造への局所的な構造相変態が起こった。水素原子の吸着した探針を用いて, 水素原子を Si(001)-(2×1)-H 表面に供給すると, 局所的に (2×1) 構造から (3×1) 構造への構造相変態が起こった。

Si(001)-(2×1)-H 表面にシリコンのダングリングボンドを形成し, その表面に銀を蒸着するとき, 銀原子はダングリングボンドに選択的に吸着する。孤立したダングリングボンドの場合, ダイマー列とダイマー列の間に 1 個の銀原子が吸着した構造や 3 次元成長した銀のクラスターが現れる。連続したダングリングボンド細線の場合には, 細線に沿って銀原子が層状成長する。これらの結果は, 金属原子細線やそれらを組み合わせた様々なパターンを形成するさいに, ダングリングボンドをもつ下地をあらかじめ水素原子などで終端しておき, STM 探針による原子の引き抜きによってダングリングボンドを形

成し, そこに金属原子を選択吸着させる方法が有効であることを示唆している。

文 献

- 1) G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber and E. Weibel: Phys. Rev. Lett. **50**, 120 (1983).
- 2) D.M. Eigler and E.K. Schweizer: Nature **344**, 524 (1990).
- 3) A. Kobayashi, F. Grey, R.S. Williams and M. Aono: Science **259**, 1724 (1993).
- 4) J.W. Lyding, T.C. Shen, J.S. Hubacek, J.R. Tucker and G.C. Abeln: Appl. Phys. Lett. **64**, 2010 (1994).
- 5) T.-C. Shen, C. Wang, G.C. Abeln, J.R. Tucker, J.W. Lyding, Ph. Avouris and R.E. Walkup: Science **268**, 1590 (1995).
- 6) F. Grey, C. Thirstrup and H. Busch: "Large Clusters of Atoms and Molecules", ed. by T.P. Martin (Kluwer, Dordrecht, 1996) p.463.
- 7) C. Thirstrup, M. Sakurai, T. Nakayama and M. Aono: J. Korea Phys. Soc. (Proc. Suppl.) **31**, S 31 (1997).
- 8) T. Hashizume, S. Heike, M.I. Lutwyche, S. Watanabe, K. Nakatani, T. Nishi and Y. Wada: Jpn. J. Appl. Phys. **35**, L 1085 (1996).
- 9) K. Stokbro, C. Thirstrup, M. Sakurai, F.P. Murano and F. Grey: Phys. Rev. Lett. **80**, 2618 (1998).
- 10) 渡邊 聡: 日本物理学会誌 **53**, 421 (1998).
- 11) J.J. Boland: Phys. Rev. Lett. **65**, 3325 (1990).
- 12) T. Uchiyama and M. Tsukada: Surf. Sci. **313**, 17 (1994).
- 13) T. Hitosugi, T. Hashizume, S. Heike, S. Watanabe, Y. Wada, T. Hasegawa and K. Kitazawa: Jpn. J. Appl. Phys. **36**, L 361 (1997).
- 14) C. Thirstrup, M. Sakurai, K. Stokbro and M. Aono: submitted to Phys. Rev. Lett.
- 15) S. Watanabe, Y.A. Ono, T. Hashizume and Y. Wada: Phys. Rev. B **54**, R 17308 (1996).
- 16) J.W. Lyding, G.C. Abeln, T.C. Shen, C. Wang and J.R. Tucker: J. Vac. Sci. Technol. B **12**, 3735 (1994).
- 17) D.P. Adams, T.M. Mayer and B.C. Swartzentruger: J. Vac. Sci. Technol. B **14**, 1642 (1996).
- 18) T.C. Shen, C. Wang and J.R. Tucker: Phys. Rev. Lett. **78**, 1271 (1997).
- 19) M. Sakurai, C. Thirstrup and M. Aono: 準備中.
- 20) C. Thirstrup, M. Sakurai, T. Nakayama and K. Stokbro: submitted to Surf. Sci.
- 21) M. Sakurai, C. Thirstrup, T. Nakayama and M. Aono: Surf. Sci. **386**, 154 (1997).
- 22) C. Thirstrup, M. Sakurai, T. Nakayama and M. Aono: Surf. Sci., in press.
- 23) G.P. Salam, M. Persson and R.E. Palmer: Phys. Rev. B **49**, 10655 (1994).
- 24) P. Gupta, V.L. Colvin and S.M. George: Phys. Rev. B **37**, 8234 (1988).
- 25) H. Kuramochi, H. Uchida and M. Aono: Phys. Rev. Lett. **72**, 932 (1994).
- 26) X.F. Lin, K.J. Wan and J. Nogami: Phys. Rev. B **47**, 10947 (1993).