

**解説****表面光吸収法によるエピタキシャル成長過程の観察**

堀越 佳治・川島 稔・小林 直樹

NTT 基礎研究所 〒180 武蔵野市緑町 3-9-11

(1990年7月16日受理)

***In-situ* Observation of Epitaxial Growth Process  
by Surface Photo-Absorption**

Yoshiji HORIKOSHI, Minoru KAWASHIMA and Naoki KOBAYASHI

Basic Research Laboratory, NTT Corporation,  
3-9-11, Midori-cho, Musashino 180**1. はじめに**

エピタキシャル成長における成長プロセスのその場観察法としては、これまでほぼ反射高エネルギー電子線回折法 (RHEED) が用いられてきた<sup>1)</sup>。RHEED 法は成長表面の原子配列に敏感であり、このため表面原子の結合状態を知ることが可能である。また表面の原子レベルの凹凸の変化に伴う反射強度の振動から、層成長を監視することができる<sup>2)</sup>。これらの特徴のために、エピタキシャル成長におけるその場観察技術として広く用いられてきた。しかし RHEED 法は電子ビームを用いるために超高真空中での結晶成長にしか応用できないこと、高エネルギー電子を照射するために成長表面に損傷を与える可能性があること、等の問題点を含んでいる。

光によるその場観察が可能になればこれらの問題は払拭され、ガス雰囲気を用いる気相成長法 (VPE, MOCVD 等) にも応用が可能となる。ところが成長中の表面状態の変化は表面のわずか 0.1 nm 程度の原子のサイズの厚さの中で生じており、これを数百 nm の波長をもつ光で観察することはきわめて困難である。たとえば光を成長表面に照射し、その反射光を観察しても圧倒的に強い母体からの反射のために、表面のわずか 0.1 nm の厚さの寄与は完全にマスクされてしまい、成長層の観察は不可能であった。このため強い母体からの反射をいかに取り除き表面層のみの情報を取り出すかが、光でモニターする場合の大きな鍵であった。これに対し Aspnes らは成長表面に垂直に光を入射し、反射光を成長表面の

主軸方向に対して二つの直交偏光成分に分け、これらの差をとることにより、等方的と考えられる母体結晶からの寄与を除去する反射率差分光法 (RDS) を開発した<sup>3)</sup>。これによって光による原子レベルの成長プロセスのモニターが可能になり、MBE や MOCVD 法への応用が現在活発にすすめられている。しかしこの方法では、電界ベクトルは常に成長表面に平行であり、このためこの方法は基本的には成長表面の面内異方性を検出する技術である。したがって等方的な成長表面には応用できない。また大きな二つの反射光強度の間のごくわずかな差を検出するため S/N が低く、もともと雑音の多い MBE, MOCVD 法等への応用は容易ではない。

筆者らは P 偏光をブルースター角 (Brewster) で入射すると、半導体や誘電体の反射率の主要部分を形成する屈折率の実部による反射が消失することに着目し、新しい光モニター技術を開発した。この方法では成長表面における光吸収に対応した反射率を測定するため、以下では表面光吸収法 (surface photo-absorption; SPA) と呼ぶことにする。本報の目的はこの方法の特徴と効果について概略を述べることである。

**2. 表面光吸収法 (SPA)**

RDS 法は MOCVD 法など気相法にもその場観察の手段を与えたという意味で画期的な技術である。しかし系の複雑さや低い S/N 比のために電氣的、機械的雑音の多い一般の成長系に応用するには困難が伴う。われわれはもっと安定に、かつ一般の成長系にも適用可能な技

術として、P偏光をブルースター角で入射することによって母体結晶の反射を低減する着想を得、この方法が成長プロセスのモニターにきわめて有用であることを実験的に確認した。

ブルースター角入射における吸収性薄膜の反射率に及ぼす効果については、McIntyre と Aspnes によって詳しい理論的検討が行われた<sup>4)</sup>。基板結晶の反射率を  $R(0)$  その上に  $d$  の厚さの極薄層が付着した場合の反射率を  $R(d)$  とすると、その場合の反射率の変化は

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{R(d) - R(0)}{R(0)}, \quad (1)$$

のように表される。基板結晶と表面成長層の誘電率をそれぞれ  $\epsilon_{\text{sub}}$ ,  $\epsilon$  とすると、S偏波およびP偏波に対する反射光の変化  $(\Delta R/R)_s$ ,  $(\Delta R/R)_p$  はそれぞれ

$$\left(\frac{\Delta R}{R}\right)_s = \frac{8\pi d \cos \varphi}{\lambda} \text{Im} \left\{ \frac{\epsilon - \epsilon_{\text{sub}}}{1 - \epsilon_{\text{sub}}} \right\} \quad (2)$$

$$\left(\frac{\Delta R}{R}\right)_p = \frac{8\pi d \cos \varphi}{\lambda} \text{Im} \left\{ \left[ \frac{\epsilon - \epsilon_{\text{sub}}}{1 - \epsilon_{\text{sub}}} \right] \times \left[ \frac{1 - (1/\epsilon_{\text{sub}})(\epsilon + \epsilon_{\text{sub}}) \sin^2 \varphi}{1 - (1/\epsilon_{\text{sub}})(1 + \epsilon_{\text{sub}}) \sin^2 \varphi} \right] \right\} \quad (3)$$

のように表される<sup>4)</sup>。図1は GaAs (001) 基板上に Ga 原子を1原子層付着させた場合の反射率の変化の入射角依存性を、式(2)、(3)を用いて計算した結果である。ここで Ga は1原子層でも光学定数を定義できると仮定し、その値として Ga 厚膜の値を用いている。波長を  $\lambda=325 \text{ nm}$ , および  $488 \text{ nm}$  とし、対応する GaAs の屈折率を  $\lambda=325 \text{ nm}$ ,  $488 \text{ nm}$  についてそれぞれ  $n_s = 3.4 - 1.8i$ ,  $4.5 - 0.41i$ <sup>5)</sup>, Ga の誘電率をそれぞれの波長において  $\hat{\epsilon} = -14 - 7.6i$ ,  $-26 - 26.8i$ <sup>6)</sup> と仮定した。図から明らかにP偏波を用いた場合、ブルースター角近傍

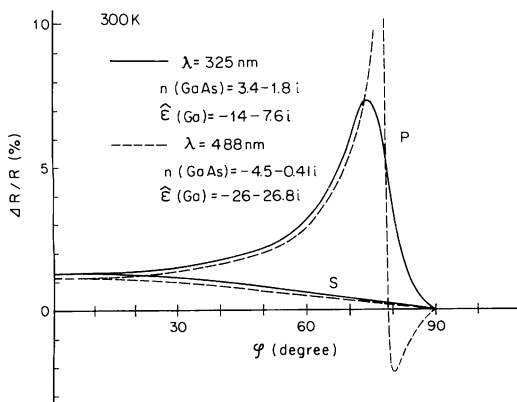


図1 GaAs (001) 面上へ Ga 1原子層を吸着させた場合の反射率変化の入射角度依存性

での反射率変化の増加が著しく、 $\lambda=325 \text{ nm}$  では  $\Delta R/R$  は7%以上に達する。この計算では Ga 1原子層が Ga 厚膜と同じ光学定数をもつと仮定しているため、上記の結果は現実的なものではない。しかしこの方法の有用性を想像させるには十分である。

ブルースター角でP偏光を入射させるもう一つの利点は、電界ベクトルが成長表面に平行な成分と垂直な成分の両方をもつことである。このため成長表面の主軸方向に対する面内異方性のみならず、表面に垂直な方向のバンドとの相互作用により、等方性の表面に対しても信号が得られる。

### 3. 実験装置

図2は実験に用いた装置の概略で、通常の MBE 成長装置にはほぼブルースター角で光入射の可能な石英窓が設けられている。また RHEED 信号との比較を行うため、15 kV の加速電圧をもつ電子銃と蛍光スクリーンを装備している。用いた基板は2インチ GaAs (001) 基板で、実験にさきだって通常の化学処理後、成長装置内で As<sub>4</sub> 照射下 630°C まで昇温し、表面酸化膜の除去を行った。Ga および Al の供給量は通常の MBE 成長における RHEED 振動の周期から決定し<sup>2)</sup>, As<sub>4</sub> の供給量は基板の位置に設置されたイオンゲージによって測定した。SPA 法はレーザー光を入射しその反射光を測定するだけのきわめて単純な測定原理のため、電気的、機械的雑音に対して安定な測定ができる。この方法は成長に伴う RHEED 強度の振動のような、表面の幾何学的な構造に直接反映した信号は得られないものの、RHEED では得られない表面の化学組成、金属の層状成長等に関する情報が得られる。したがって SPA 法は RHEED と相補的に用いることにより、エピタキシャル成長の監視、成長メカニズムの解明等に効果を発揮するものと期待される。

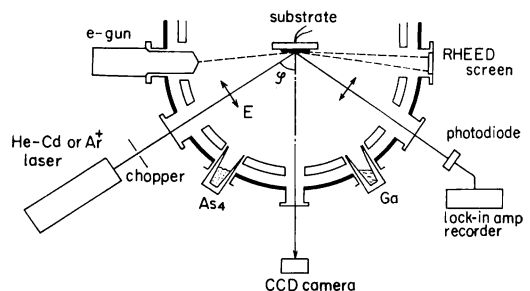


図2 実験に用いた分子線エピタキシャル装置

#### 4. 実験結果

すでに述べたように SPA 法の RDS 法との顕著な相違の一つは入射光電界ベクトルが成長面に水平な成分だけでなく、垂直な成分も含んでいることである。したがって成長表面に異方性がある場合はもちろん、等方的な場合でも表面の観察が可能である。図3は MOCVD 装置において、 $T_s=560^\circ\text{C}$  の As 安定化 (001) 基板表面上に1原子層 ( $N_s$ ) に相当する Ga 原子を供給した場合の SPA 信号の強度変化の波長依存性を示したものである<sup>7)</sup>。Ga の供給源としてはトリエチルガリウム (TEG) を用いており、この温度では TEG は完全に熱分解して、表面には Ga 原子が供給されている。ほぼ光エネルギー 3.5 eV 以下の領域では顕著な異方性が検出され、高エネルギー側では等方的な信号が得られる。前者のスペクトルは MBE のものとは逆の異方性をもっている。MBE 成長において観察される異方性は、Ga 原子が (110) 方向に二量体を形成していることによるものであり<sup>8)</sup>、図3の結果は MOCVD 法の場合、成長表面に Ga 二量体は存在しないことを暗示している。[1 $\bar{1}$ 0] 方向において SPA 信号が強くなるのは、下地の As 原子とのポンドが励起されるためと考えられる。高エネルギー側の等方的な信号は RDS 法には現れない信号であり、Ga 1原子層の誘電率の虚数部が下地結晶に比べて著しく大きいことにより生じているものと考えられる。

図4は MBE 法により GaAs 基板上に Ga 原子を供給した場合の SPA 信号強度の異方性を示したものである。この場合の  $T_s$  は  $580^\circ\text{C}$ 、使用した波長は 325 nm、および 488 nm である。いずれの波長においても、Ga 原子が  $N_s$  に達するまで SPA 信号は供給量にほぼ比例して増加する。 $N_s > 1$  では飽和してほぼ一定値をとる。このような飽和現象は、表面が1原子層で被われるとそれ以上の Ga 原子は凝集して液滴となり、Ga 原子面上で局在化するために生じる。図からわかるように  $\lambda=327\text{ nm}$  ではほとんど異方性はないが、 $\lambda=488\text{ nm}$  では [110] 方向に光を入射した場合の SPA 信号強度は [ $\bar{1}$ 10] 方向に比べて著しく大きい。この異方性は RDS 法と同じ傾向にあり、Ga 二量体が形成されていることを暗示している。

図3、4に示した波長による異方性の出現は、図1の計算例に抵触するように見える。しかし図1は Ga 1原子層がバルクと同じ誘電率をもつと仮定した計算結果である。実際には Ga 1原子層は、未だ等方的な金属結合

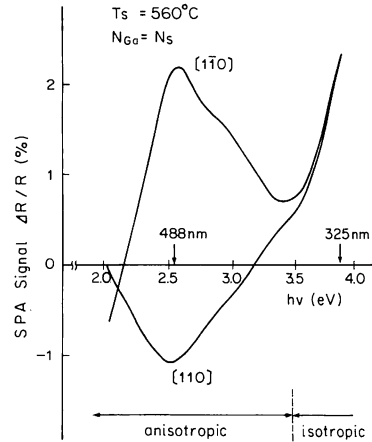


図3 吸着ガス雰囲気 (MOCVD 法) で GaAs (001) 面上に Ga 1原子層を吸着させた場合の SPA 信号強度スペクトル

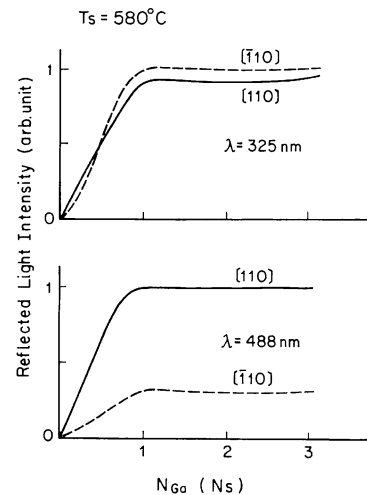


図4 超高真空中 (MBE 法) で GaAs (001) 面上に Ga 原子を吸着させた場合の SPA 信号強度の Ga 供給量依存性

を形成しておらず、むしろ二量体の形成や下地との化学結合などにより、異方性が生じるものと考えられる。以下では主として波長 325 nm の光を用い、等方的な特徴について議論をすすめる。

##### 4.1 金属エピタキシャル成長に伴う SPA 信号

まず Ga、および Al の金属原子を GaAs 表面に成長させた場合の SPA 信号について検討を行う。図4で述べたように  $T_s=580^\circ\text{C}$  では SPA 信号強度は  $N_{Ga}$  がほぼ  $N_s$  に達するまではほぼ直線的に増加し、飽和する。また波長が 325 nm の場合 SPA 信号は [110], [1 $\bar{1}$ 0] の主軸方向に対して等方的である。これに対し

て  $T_s \leq 500^\circ\text{C}$  では, SPA 信号強度は  $N_{\text{Ga}} = N_s$  で飽和せず, Ga 供給量にはほぼ比例して増加する. 原子レベルの厚さの Ga 金属膜の  $\varepsilon$  が厚さ  $d$  に対してゆっくり変化するものとすれば, (3)式で  $d/\lambda < 1/1000$  であるから, SPA 信号強度  $\Delta R/R$  は  $d$  に比例して増加することになる. しかしながら  $T_s \leq 500^\circ\text{C}$  で得られるこのような比例関係は, Ga が層状に成長していることを意味しない. 同時に行った RHEED 観察結果によれば, Ga 供給量が  $N_s$  を超えると表面超構造は急激に消失し, 弱いハローパターンが現れる. これに対し基板からの回折スポットは強度は著しく減少するものの完全には消失しない. これらの事実は Ga がきわめて小さい, かつ高密度の液滴を形成していることを示している. いずれにしても  $N_{\text{Ga}} = N_s$  に達するまでは SPA 信号強度は  $N_{\text{Ga}}$  にほぼ比例して増加しており, 分数原子層の成長監視や表面の化学組成の決定に利用できる.

GaAs (001) 面上における Ga 金属膜成長の基板温度依存性を詳しく調べるため, Ga 原子を1原子層相当分 ( $N_{\text{Ga}} = N_s$ ) ずつ間欠的に  $10N_s$  まで供給し, その後  $\text{As}_4$  を供給する実験を基板温度を変えて行った. 図5はその一例である. 基板温度が  $580^\circ\text{C}$  以上の場合, 図4の結果と同様 SPA 強度は最初の1原子層供給終了後に飽和する. これに対し  $530^\circ\text{C}$  では  $4N_s$  まで,  $430^\circ\text{C}$  では  $6N_s$  まで  $300^\circ\text{C}$  では  $10N_s$  まで, はっきりしたステップ状の増加が見られる. すでに述べたように, この現象は基板温度の低下とともに Ga 液滴のサイズが波長に比べて小さくなり, かつ高密度になることを暗示している. 基板温度  $300^\circ\text{C}$  で成長させた10原子層に相当する Ga 金属層の RHEED 回折パターンには, 強いハローパターンが観察されるが, 基板からの回折スポットも完全には消滅しておらず, 基板表面は液滴によって完全には被われていないことを示している. 同様

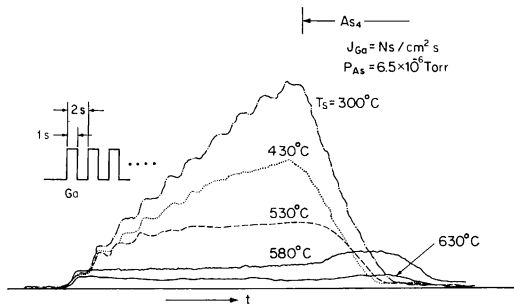


図5  $10N_s$  の Ga 原子の間欠供給後  $\text{As}_4$  を供給するプロセスの SPA 信号強度の変化 ( $\lambda = 325 \text{ nm}$ )

な現象はさらに低い基板温度においても観察された. 図6は基板温度  $4^\circ\text{C}$  において Ga の間欠成長を行った場合の結果である.  $40N_s$  までは SPA 信号は  $N_s$  ごとに等ステップで増加する.  $40N_s \sim 250N_s$  成長に対しては, SPA 信号の増加率が減少し, 徐々に飽和する傾向が現れる. この原因は金属層の厚さが光の透過深さに比べて無視できる厚さではなく, 反射率が金属バルクの値に近づくためと考えられる.

Al の成長の場合は Ga の場合とは異なり, 比較的高い基板温度においても波長に比べて大きい液滴の形成は観察されない. 図7は基板温度  $700^\circ\text{C}$  において Al を間欠的に  $10N_s$  まで供給し, その後  $\text{As}_4$  を供給するプロセスにおける SPA 反射強度を記録したものである. 基板温度が Al の融点よりも高いのにもかかわらず, SPA 強度はステップ状の増加を示し, Ga の場合のような液滴が発生している証拠は見られない. Al の供給周期のあと, SPA 信号にわずかな減少が見られるが, これは残留  $\text{As}_4$  との反応により表面の Al 原子が部分的に消費されるためである. 図8は基板温度を  $25^\circ\text{C}$  と

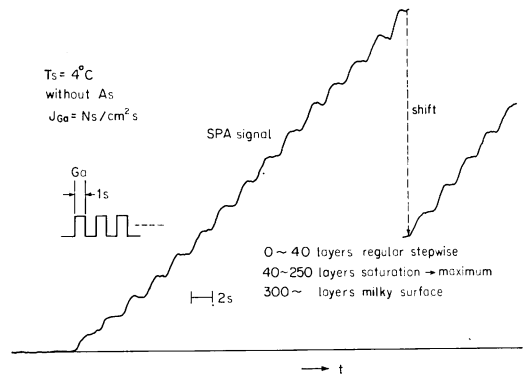


図6  $T_s = 4^\circ\text{C}$  における Ga の間欠供給における SPA 信号強度の変化 ( $\lambda = 325 \text{ nm}$ )

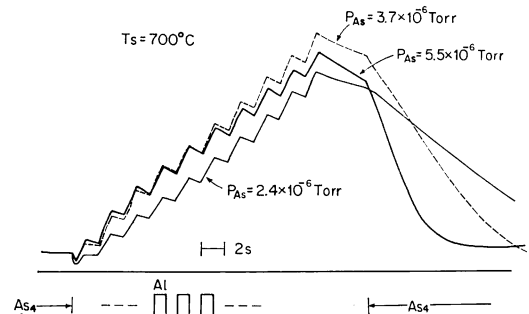


図7  $10N_s$  の Al 原子間欠供給後,  $\text{As}_4$  を供給するプロセスの SPA 強度の変化 ( $\lambda = 488 \text{ nm}$ )

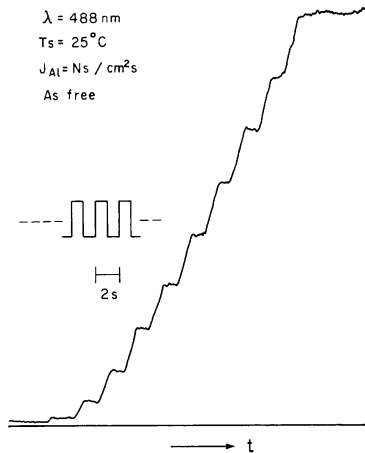


図 8 Al の間欠供給に伴う SPA 信号強度の変化 ( $T_s = 25^\circ\text{C}$ )

し,  $\text{As}_4$  供給をほぼ完全にゼロとした場合の結果で, SPA 信号強度はステップ状に増加する. 最初の 1~2 原子層成長に伴う SPA 信号の増加率が小さい理由は明確ではないが, 1~2 原子層の範囲では, Al 層が金属的な誘電率をもつに至っていないためと考えられる. このようにして成長させた Al 層は SPA の範囲では層状成長しているように見える. RHEED 回折を観測すると, Al 層は GaAs (001) 面上にエピタキシャル成長しているが, 回折パターンはスポット状でありこれらのスポットは基板を回転しても停止したままである. この現象は成長層が微小なクラスタ状になっていることを暗示している. 同様な結果は成長温度を  $300^\circ\text{C}$  まで上昇させても観察されたが,  $400^\circ\text{C}$  以上の成長温度ではストリーク状の回折パターンになり, 基板回転とともに移動しないスポットも消失した. このことは実際に平坦性のよい Al 層が成長していることを示している.

#### 4.2 MBE 成長への応用

前節で述べたように SPA 法の特徴は表面状態の変化を検出するところにある. したがって通常の MBE や MOCVD 成長のように成長中に表面の化学的性質が変化しないと考えられる場合, SPA 法による成長のモニターは不可能のように考えられる. しかし, すでに述べたように, たとえば GaAs 成長の場合, SPA による反射強度は表面の Ga 被覆率に比例して増加する. このため成長中の表面化学組成の監視が可能である. 図 9 は MBE 法による GaAs 成長中の SPA 信号を RHEED 反射強度の振動と比較したものである. 成長開始直前までは  $\text{As}_4$  のみが GaAs 基板表面に供給されており,  $(2 \times 4)$  As 安定化表面が形成されている. Ga の供給に

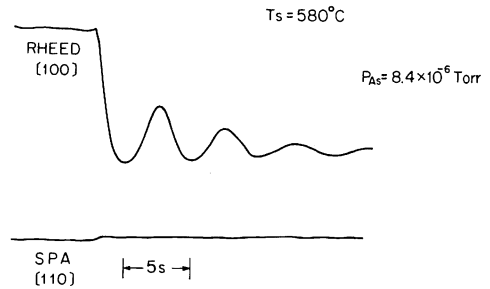


図 9 GaAs (001) 基板上 GaAs MBE 成長時の SPA 信号と RHEED 信号の比較

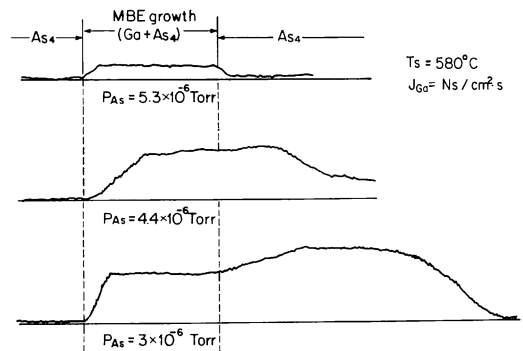


図 10 GaAs MBE 成長における SPA 信号強度の  $P_{\text{As}}$  依存性

よって成長が始まると RHEED, SPA 信号ともに変化が生じる. RHEED 強度の顕著な振動に対し SPA 強度には振動は現れない. この事実は SPA 法が表面の原子レベルの凹凸の変化には鈍感であることを示している. しかしながら成長が始まると SPA 強度がわずかながら増加する. これは成長表面の Ga 濃度が増加したためである.

図 10 は同様な SPA 信号強度を異なる  $\text{As}_4$  圧のもとで測定した結果を示したもので,  $\text{As}_4$  の供給量が適正値以上であれば成長終了後ただちにもの As 安定化面の強度に復帰する ( $P_{\text{As}} = 5.3 \times 10^{-6}$  Torr の結果).  $\text{As}_4$  の供給量が過少な場合, SPA 信号は成長とともに増大し, やがて一定値に達する. この値は表面が一原子層の Ga で完全に被覆された場合の強度である.  $P_{\text{As}} = 4.4 \times 10^{-6}$  および  $3 \times 10^{-6}$  Torr の場合の成長開始後に現れる平坦部の強度がこれに相当する. 一定値で飽和するのは, 図 4 に関連して述べたように一原子層の被覆が完了するとさらに供給される Ga 原子が凝集して液滴を形成するためである. 表面に過剰に蓄積された Ga のため, 成長終了後の As 安定化面の形成には長時間

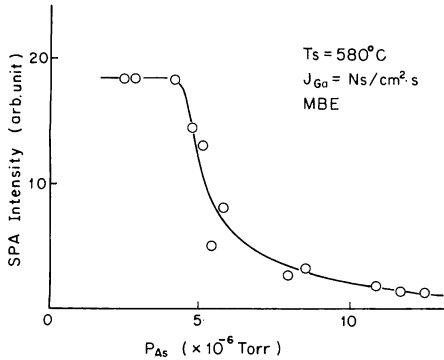


図 11 GaAs MBE 成長の定常状態における SPA 信号強度

を要する。むしろこのような条件下では鏡面成長は得られない。

図 11 は図 10 の実験における成長中の SPA 強度の定常値を  $As_4$  圧 ( $P_{As}$ ) に対してプロットしたもので、 $P_{As} < 5 \times 10^{-6}$  Torr で見られる平坦部は Ga 面の形成に対応するものである。あとで述べるが毎秒 1 原子層相当の  $As_4$  分子の供給はほぼ  $5 \times 10^{-6}$  Torr で得られ、これ以上の供給量に対して定常的なエピタキシャル成長が可能になる。しかしたとえば発光効率の高い結晶を成長させるためには、 $P_{As}$  を必要最少限に制限する必要がある。図 11 の結果は SPA 強度を監視することによってそれが可能であることを示している。このような SPA 法による表面化学組成の監視は、MOCVD 法においても同様に可能である。

#### 4.3 MEE 成長への応用

III 属元素、V 属元素を交互に供給する MEE 法では、成長サイクルごとに表面化学組成に大きな変化が生じるため、SPA 法による成長プロセスの監視が容易である。図 12 は GaAs の MEE 成長に伴う SPA 信号を記録したもので、1 周期あたりの Ga 供給量を  $N_s$  (供給時間 1s)、 $P_{As} = 5 \times 10^{-6}$  Torr、 $As_4$  供給時間 3s を一定とし、基板温度を変化させている。 $T_s = 530^\circ C$  および  $480^\circ C$  の結果では、Ga 供給時の SPA 信号のピーク強度が  $630^\circ C$  および  $580^\circ C$  のそれに比べて減少している。この原因はこの条件下では  $As_4$  の供給量が過剰となり、Ga 供給時に完全な Ga 被覆面が形成されないためである。この図からこの  $As_4$  供給量は  $T_s = 630^\circ C$  に対して適正と判断できる。

図 13 は  $T_s = 580^\circ C$  において  $P_{As}$  を変化させたときの成長プロセスを 5 サイクルにわたって記録したものである。 $P_{As} = 3 \times 10^{-6}$  Torr では成長を重ねるに従って  $As_4$  供給時に SPA 強度が初期の値に復帰しにくくな

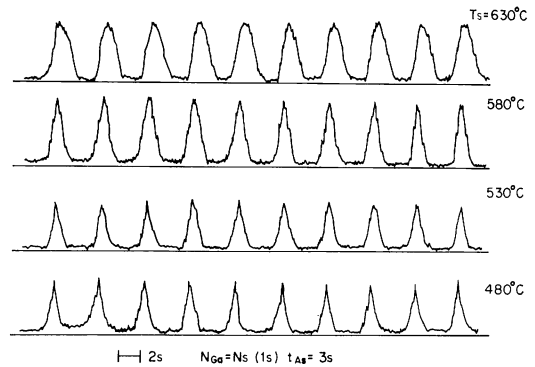


図 12 MEE 法による GaAs 成長における SPA 信号強度変化の基板温度依存性 ( $P_{As} = 5 \times 10^{-6}$  Torr)

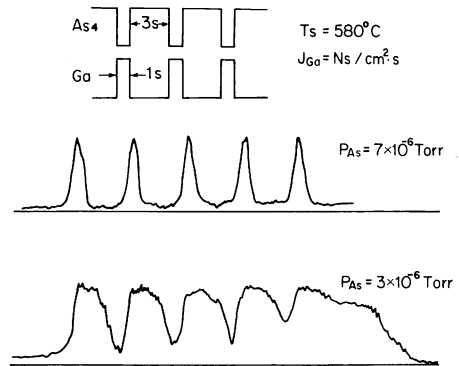


図 13 MEE 法による GaAs 成長における SPA 信号強度変化の  $P_{As}$  依存性 ( $T_s = 580^\circ C$ )

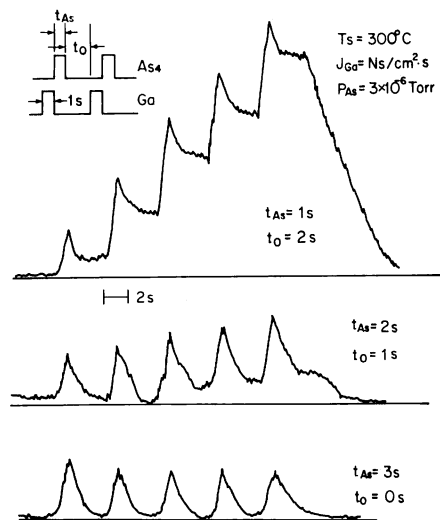


図 14 MEE 法による GaAs 成長における SPA 信号強度変化の  $As_4$  供給量依存性 ( $T_s = 300^\circ C$ )

り、やがて一定の値に飽和する傾向をもつ。これは  $As_4$  供給量の不足のために成長とともに  $As$  面の形成が困難になるためである。5 サイクルの成長終了後再び  $As_4$  を連続供給しているため、表面には再び  $As$  面が形成されている。

図 14 は  $T_s=300^\circ\text{C}$  における同様な SPA 信号強度の時間変化を示したものである。この場合  $P_{As}=3\times 10^{-6}$  Torr を一定とし、 $As_4$  の供給量は供給時間によって制御している。供給時間が 1s の場合、 $As$  供給量が過少となり、成長表面には過剰な Ga 原子の蓄積が生じる。しかし前節で述べたように、このような低温で生じる Ga 液滴は微小かつ高密度のため、SPA 強度は成長サイクルごとにステップ状に増加する。供給量を増加させると永続する振動が得られるようになる。以上のように SPA 信号を監視することにより、MEE 成長における  $As_4$  供給量の最適値を決定することが可能である。

## 5. おわりに

エピタキシャル成長の光学的モニター技術として最近われわれが開発した表面光吸収法 (SPA) について概説した。この方法は P 偏光をブルスター角で入射させることにより、母体結晶からの強い反射を除去することを基本原理としており、光学系の単純さ、S/N の高さ等のため、どのような成長系にも適用可能であることが特徴である。SPA 法の入射条件では、入射光の電界ベクトルは成長表面に平行な方向だけではなく垂直な成分も含んでいるため、成長面に沿った方向および垂直な方向の化学結合を励起することができる。SPA のこの性質のために表面原子の結合状態の研究が可能である。また MOCVD 法などガス分子を用いる成長法に応用することにより、ガス原料の分解過程を明らかにすることができる。

SPA 法は表面における光吸収損失に敏感である。このため半導体や絶縁体上の金属膜の成長のモニター手段としてきわめて優れている。金属原子が層状に成長している場合、金属膜の光吸収 (誘電率の虚部) のために、

SPA 信号は原子レベルの層厚に比例して増加する。SPA 法で検出される平坦性はあくまでも光学的に見た場合の平坦性であるが、これと RHEED の結果を相補的に組み合わせることにより、金属膜エピタキシャルの正確なモニターが可能となる。

SPA 法は RHEED のように表面の物理的凹凸には敏感ではないが、成長中の表面の化学組成の監視に有効であることが確認された。このため MBE 法、MOCVD 法、MEE 法における  $As_4$  供給量の最適化が可能となった。表面の化学組成は結晶内に導入される欠陥に密接に関係しており、将来欠陥の種類や密度の制御に威力を発揮するものと期待される。

なお、本研究は NTT 基礎研究所木村達也所長およびスタッフの支援のもとに行われたものである。

## 文 献

- 1) A. Y. Cho: "GaAs epitaxy by a molecular beam method," *J. Appl. Phys.*, **42** (1971) 2074.
- 2) J. J. Harris, B. A. Joyce and P. J. Dobson: "Oscillations in the surface structure of Sn-doped GaAs during growth by MBE," *Surface Sci.*, **103** (1981) L90.
- 3) D. E. Aspnes, J. P. Harbison, A. A. Studna and L. T. Florez: "Optical-reflectance and electron-diffraction studies of molecular beam epitaxy growth transients on GaAs (001)," *Phys. Rev. Lett.*, **59** (1987) 1687.
- 4) J. D. E. McIntyre and D. E. Aspnes: "Difference reflection spectroscopy of very thin surface films," *Surface Sci.*, **24** (1971) 417.
- 5) B. O. Seraphin and H. E. Bennett: *Semiconductors and Semimetals*, ed. R. K. Willardson and A. C. Beer (Academic Press, New York, 1966) vol. 3, p. 519.
- 6) O. Hunderi and R. Rydberg: "Band structure and optical properties of gallium," *J. Phys. F: Metal Phys.*, **4** (1974) 2084.
- 7) N. Kobayashi and Y. Horikoshi: "Spectral dependence of optical reflection during flow-rate modulation epitaxy of GaAs by surface photo-absorption method," *Jpn. J. Appl. Phys.*, **29** (1990) 334.
- 8) D. E. Aspnes, J. P. Harbison, A. A. Studna, L. T. Florez and M. K. Kelly: "Optical studies of molecular beam epitaxy growth of GaAs and AlAs," *J. Vac. Sci. Technol.*, **B6** (1988) 1127.