

ZnS から成長した ZnO 櫛状結晶中の転位と結晶成長機構

岩 永 浩・柴 田 昇・鈴 木 邦 夫*

(昭和49年 9 月29日受理)

Dislocations and Growth Mechanism of Comb-like ZnO Crystals from ZnS

Hiroshi IWANAGA, Noboru SHIBATA and Kunio SUZUKI

Abstract

In the growth experiment of the ZnO ribbon crystal from ZnS many comb-like crystals were found. It seems that they were composed of an initial needle and many c -whiskers grown on the basal plane of the initial needle. Observations of dislocations in those crystals by transmission electron microscope and morphological studies by scanning electron microscope were carried out. Dislocations introduced to accomodate the lattice misfit were found in the region where two c -whiskers were united, and those caused by plastic deformation of the crystal were also found near the region where the crystal was stucked on the electron microscopic specimen holder. Burgers vector of these dislocations always lay in the basal plane. Dislocations which played a role in the crystal growth could never be found. The results of the observations suggest that the comb-like crystal may be grown by the two-dimensional nucleation mechanism rather than the axial dislocation mechanism. The fact that the c -whisker always grows in $+c$ direction shows that the crystallographic polarity of the ZnO crystal is one of the most important factors in the c -whisker growth.

1. 緒 論

ZnS 蒸気を酸素または水蒸気と反応させることによって、それぞれ $(11\bar{2}0)$, $(10\bar{1}0)$ 面をもつ ZnO ribbon 結晶が成長することを前に報告した^{1,2,3)}。ウルツ型構造の結晶の ribbon または platelet の成長を説明するため、いくつかの機構が提案されている。Hirth 等⁴⁾ は、 c 軸に平行で edge 成分を持った転位が、 c -needle からすべり出し、それらと結晶表面との交点 が nucleation site となって platelet が成長すると述べている。また、千川等⁵⁾ は CdS の platelet の成長を、 $[10\bar{1}0]$ needle 中の $[0001]$, $\frac{1}{3} [2\bar{1}10]$ をそれぞれの Burgers vector

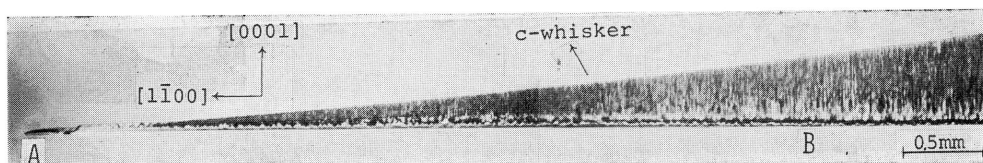
* 東京大学物性研究所

(以下 B. v. と略す) としてもつ two axial dislocation mechanism によって巧妙に説明している。Fitzgerald 等⁶⁾ は ZnS, ZnSe の外形や その中の欠陥の電顕観察を行った結果から、軸転位機構によって生じた whisker がその (0001) 面への二次元核形成によって巾を広げ、platelet へと成長していくと主張している。以上述べた成長機構は、いずれも転位が結晶成長に対して重要な役割りを果していることを主張しているが、これに対して、Jones⁷⁾ は CdS platelet の成長について、もし *c*-needle が CdS 蒸気の過飽和度の高い領域にまで成長すると、*c*-needle の prism 面上に二次元核が形成されて ledge を作り、ここから新しい *c*-needle が成長することによって、platelet が形成されると報告している。Dierssen 等⁸⁾ は CdS 結晶において、primary needle 上に side needle が成長し、これら 2 本の needle の角から corner growth によって platelet が成長すると述べている。

前報^{1, 2, 3)} で報告したように、我々の成長実験で、ZnO ribbon 結晶への成長過程にあると思われる“櫛状結晶”(第 1 図) が数多く見受けられた。この結晶は、initial needle AB とその上に櫛の歯のように成長した多数の細い *c*-whisker とから成っており、initial needle は厳密に $[10\bar{1}0]$ 方向 (ZnS を水蒸気と反応させた場合)、または $[2\bar{1}10]$ 方向から約 10° ずれた方向 (酸素と反応させた場合) を向いているので、千川等⁵⁾ の提案した成長機構によって、都合よく説明できると考えてきた^{1, 2)}。

この結晶の initial needle の一部分、細い *c*-whisker や *c*-whisker 間の薄膜は、as grown の状態で 500kV 電顕による透過観察が可能な厚さであったので、転位機構によって結晶が成長していることを直接に確めるために、透過観察による転位像観察を行った。現在までのところ、ZnS, CdS や ZnO のようなウルツ型構造をもった結晶の透過電顕観察の例は少ない。Möhling 等⁹⁾ は CdS platelet 中の転位とその運動を、Caveney¹⁰⁾ は CdS 結晶中の転位と積層欠陥をそれぞれ観察している。また Fitzgerald 等⁶⁾ もウルツ型 ZnS 結晶中の積層欠陥を観察している。しかしながら ZnO 結晶中の転位は、我々がその一部について報告³⁾ した以外には未だ観察されていないようである。

本報告では、我々の行った透過電顕観察の結果を、走査電顕による外形観察の結果とともに述べ、それらから考えられる櫛状結晶の成長機構について再検討した結果について述べる。



第 1 図 $(11\bar{2}0)$ ribbon 結晶への成長過程にある ZnO 櫛状結晶。AB は initial needle。

2. 実 験

走査電顕用の試料としての ZnO 櫛状結晶には、カーボン蒸着した後金を蒸着し、15kV の加速電圧による試料の二次電子像を観察した。また 500kV の超高压電顕による透過観察で

は、種々の g ベクトル（回折ベクトル）に対する明視野像および暗視野像を two beam 法を用いて写真撮影を行った。この電顕の試料傾斜装置は、試料を最大 $\pm 10^\circ$ しか傾斜させることができないので、希望する低指数の g に対する転位像を観察することができなかったために、B. v. を完全に決定することができなかった。しかし二、三の試料については、試料をはりつけるメッシュ自身の方向を、コンパウンドを用いて傾け、 30° だけ入射電子線の変えることができたので、転位線の方向について特別な観察を行うことができた。

3. 転位観察

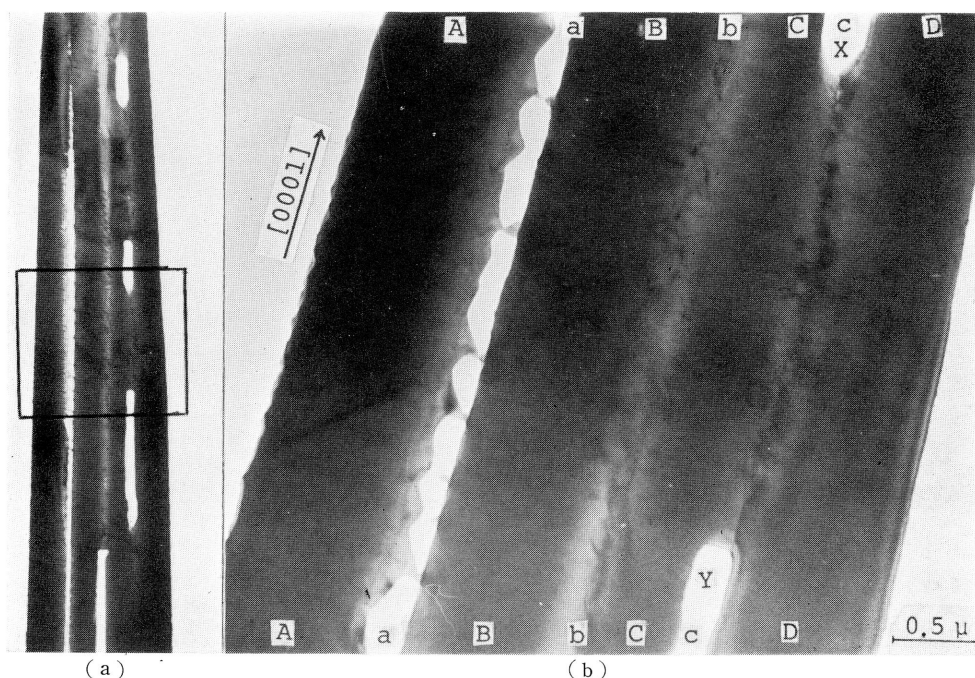
前報¹⁾で述べたように、ZnS を酸化させることによって生じた ribbon 結晶は、その成長方向が $[2\bar{1}10]$ に近く、表面は $(01\bar{1}0)$ 面に平行であった。前報ではこの型の結晶を $[2\bar{1}10]$ ribbon と呼んでいたが、ribbon 面で区別した方が都合よいので、今後これを $(10\bar{1}0)$ ribbon と呼ぶことにする。また ZnS の加水分解によって生じた ribbon 結晶の成長方向は $[10\bar{1}0]$ で、表面は $(11\bar{2}0)$ 面に平行であった。この型の結晶も今後 $(11\bar{2}0)$ ribbon と呼ぶことにする。

as grown 状態での櫛状結晶中の c -whisker, c -whisker 間の薄い結晶膜の大部分の領域は dislocation free で、転位が観察される領域は限られていた。観察された転位はその origin から次の二つに分類される。(1)結晶成長過程で、2本の c -whisker が融合する場合、両者間の lattice misfit を accomodate するために導入された転位、(2)成長後の取扱いによって結晶に与えた塑性変形によって発生した転位。以下これらの転位像について述べる。

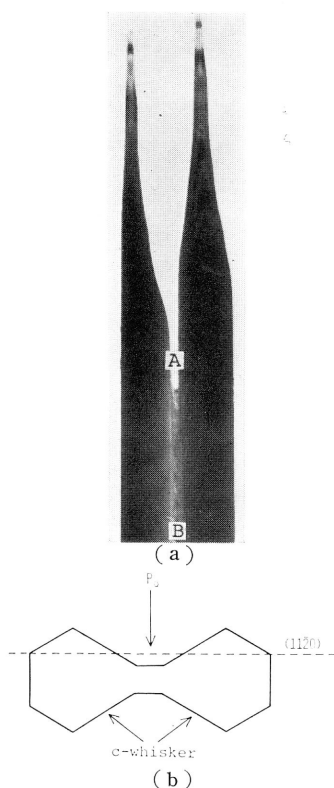
3.1. c -whisker 間の lattice misfit を accomodate するために生じた転位

$(11\bar{2}0)$ ribbon 結晶への成長過程にある櫛状結晶中の c -whisker が密に発生し、それらが太さを増すことによって、お互に融合し合う場合がしばしば見受けられる。第2図は c -whisker が融合していく状況を示す電顕写真である。図(a)では4本の c -whisker AA, BB, CC, DD は殆ど融合しており、その間に埋め残されている穴が見られる。図中黒枠で囲んだ部分の拡大写真を図(b)に示す。図中 whisker AA と BB との間には gap aa が存在する。whisker AA の右端には多くの hill が見られ、いくつかの hill の先端は、whisker BB の向い合った面上の hill の先端と接合しているのが見られる。このような process によって whisker 間の gap は次第に満され、bb, cc で示した部分のように完全に満されたものとなる。bb, cc 領域には、転位像が複雑な形ではあるが、大体縦に並んでいるのが見られる。これらの転位は2本の whisker から成長してきた結晶が接するところに発生しているので、二つの結晶の格子間の misfit を accomodate するために生じたと考えられる。図中の X, Y は埋め残された穴である。

第3図(a)は2本の c -whisker が融合した場合で、図中 AB 部分にはかなり規則正しく1

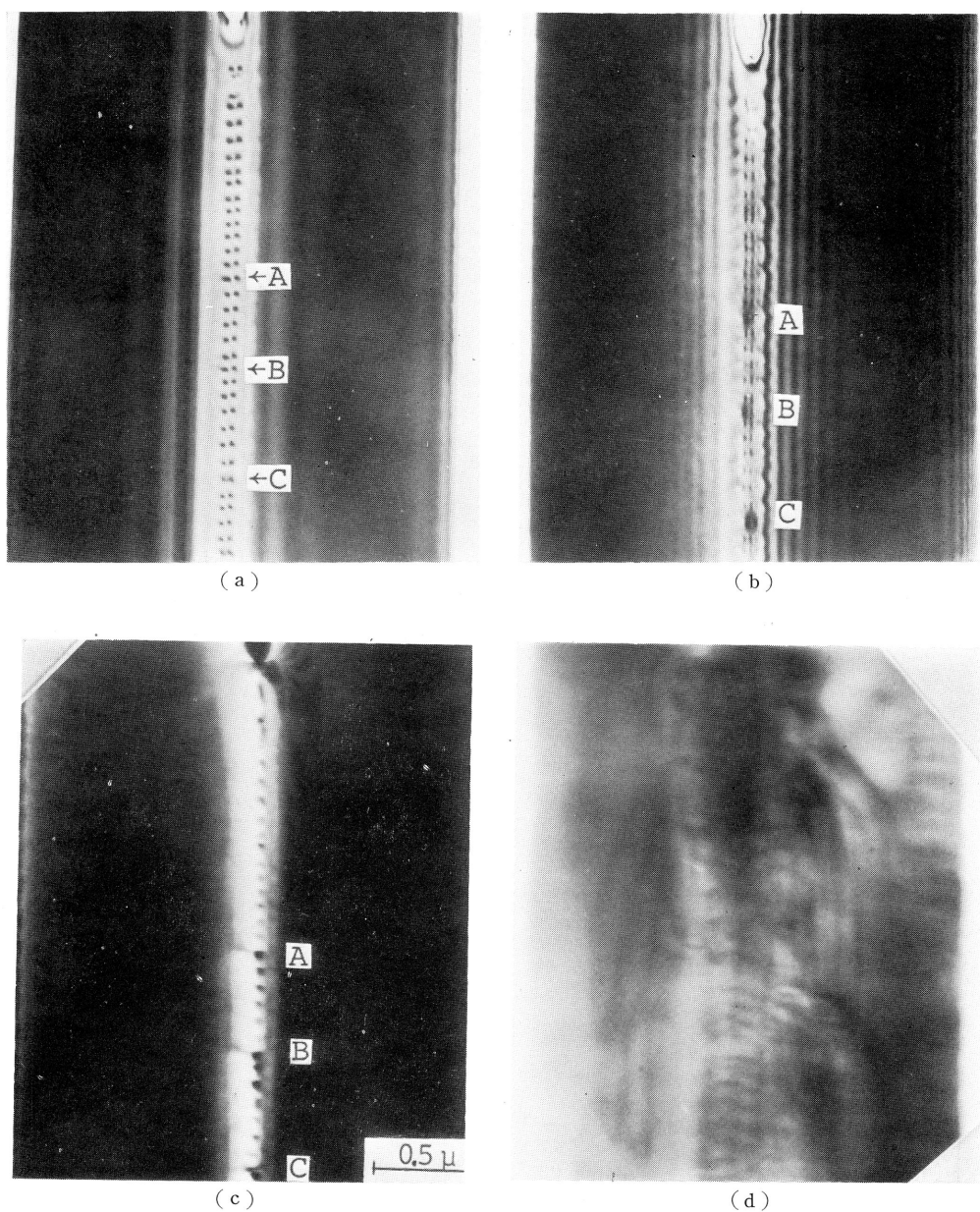


第2図 (a): 融合した4本の *c*-whisker, (b): *c*-whisker の融合過程と融合領域 bb, cc に見られる転位。X, Y は埋め残された穴。



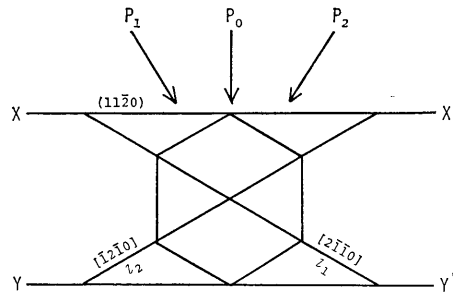
第3図 (a): 融合した2本の *c*-whisker, (b): (a)の断面図。

列に配列した転位が存在する。この2本の *c*-whisker の断面は図(b)のようになっている。第4図(a)は電子線を第3図(b)で示した P_0 ($[11\bar{2}0]$ 方向に近い) 方向から入射させ、 $g = 1\bar{1}00$ としたときの明視野像で、図(b)は $g = 0002$ の場合の明視野像である。図(a)には対をなした2点が並んでいるのが見られる。対をなした2点は、転位が結晶の表面、裏面とそれぞれ交わる場所に生じたコントラストであり、その並び方から転位線は *basal* 面内にある、大体一定の方向を向いており、そのような転位が大体一定の間隔をおいて規則正しく並んでいることが推察される。 $g = 0002$ による転位像(図(b))は殆ど消えていることから、これらの転位の B. v. は *basal* 面内にあると思われる。次にこの結晶を *c* 軸のまわりに 30° 回転させ、入射電子線の方を P_1 ($[10\bar{1}0]$ に近い) 方向に近づけ、 $g = 1\bar{2}\bar{1}0$ としたときの転位像を図(c)に示す。この場合、図(a)のような対をなした2点の列は殆ど見られず、大部分の転位線は1点の点列となって見え、ただ図中 A, B, C で示した転位のみが長く見える。このことは結晶表面に対して入射電子線の方向と転位線の方角とが、第5図のような関係にあると仮定することによって巧み



第4図 融合した2本の *c*-whisker 間に規則正しく並んだ転位。A, B, C は I_2 型の転位で、その他は I_1 型(第5図参照)。(a): 電子線を第5図の P_0 方向から入射させ、 $g=1\bar{1}00$ としたときの明視野像。(b): $g=0002$ のときの明視野像。(c): 電子線を第5図の P_1 方向から入射させ、 $g=12\bar{1}0$ のときの暗視野像。(d): 電子線を第5図の P_2 方向から入射させ、 $g=2\bar{1}10$ のときの暗視野像。

に説明される。第5図は結晶断面中に結晶方位を記入したもので、 XX' , YY' は結晶表面($(11\bar{2}0)$ 面に平行)である。第4図(a)の場合には、電子線は大体試料表面に垂直な P_0 方向から入射しているので、もしも転位 I_1 , I_2 がそれぞれ $[2\bar{1}10]$, $[\bar{1}2\bar{1}0]$ の方向にあるとすると、すべての転位線のフィルム上への投影の長さは等しくなるであろう。これに対して第4図



第5図 結晶断面の方位と入射電子線、転位線の方角との関係。

(c)の場合、電子線は P_0 と 30° 傾いた P_1 方向から入射するので、転位 l_1 のフィルム上への投影は短くなり、逆に転位 l_2 の投影の長さは長くなるであろう。このことが図(a)と図(c)との転位像の差として表われていると考えられる。図(d)は図(c)の場合とは反対の方向に 30° だけ試料を回転させ、第5図の P_2 の方向から電子線を入射させた場合の図(c)と同じ転位の明視野像である。第5図から予期されるように、この場合には大部分の転位像の長さは長くなっている。2本の *c-whisker* はお互に傾いていることが電顕像から確められており、転位 l_1 の列がこの傾きに対応する小傾角粒界をつくっていると考えられる。従って転位 l_1 は *edge* または *edge* に近い転位であろう。その B. v. を $\frac{1}{3} [11\bar{2}0]$ すなわち l_1 が 60° *edge* であると仮定すると、転位線の間隔から、2本の *c-whisker* 間の傾きは、約 10° であると推定される。 l_2 方向の転位線をもつ A, B, C のような転位は、大体5本に1本の割合で比較的規則正しく存在しており、図(a)でも注意してみると、他の転位と少しコントラストで異っていることが認められる。たゞこのような転位が格子間の *misfit* とどのように関連しているのか、具体的なモデルを考えることはできなかった。

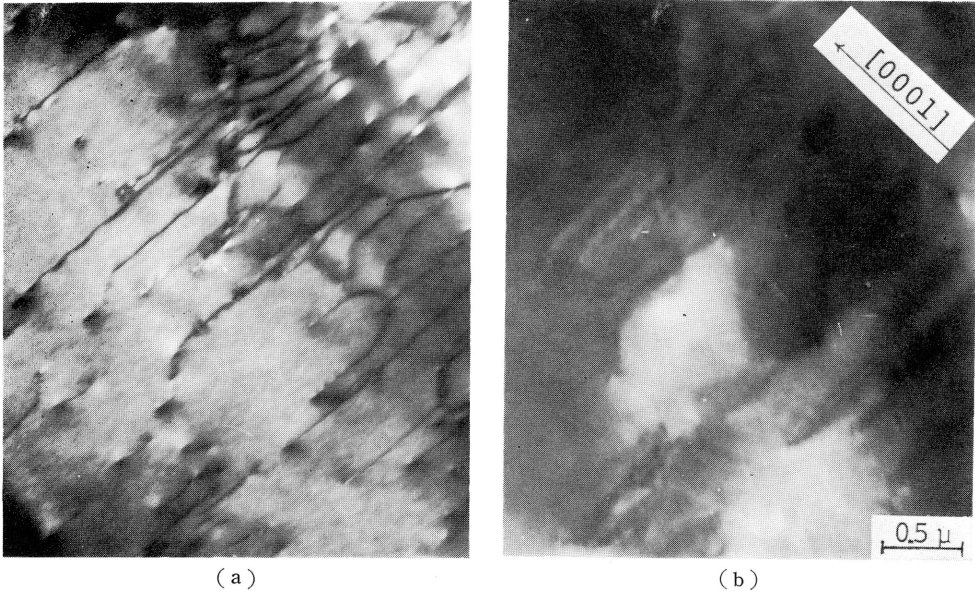
3.2. 塑性変形による転位

前に報告³⁾ したように、*c-whisker* 間の薄い結晶膜には、高い密度で分布する転位がたまに見られる。この種転位の異った g による像を第6図に示す。図(a)の転位線は結晶表面に平行に近く、わずかに傾斜していると思われる。また *node* を作っているような転位も見られる。図(a)では $g = \bar{1}2\bar{1}0$ であるが、 $g = 0002$ とすると図(b)のように弱いコントラストのみを残すようになる。従ってこれらの転位の B. v. は *basal* 面内にあり、*edge* 成分を持った転位であろうと思われる。

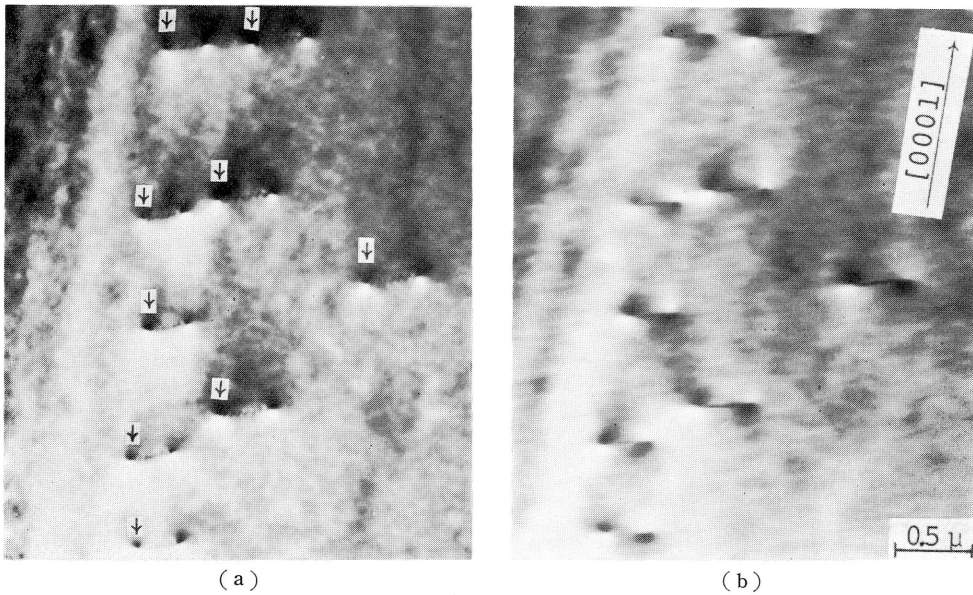
第7図(a), (b)は $g = \bar{1}2\bar{1}0$ の場合の明視野像と暗視野像である。図(a), (b)の転位線の両端でのコントラストの比較から、図中矢印で示した側が電子線の入射側であることがわかる。従ってこれら転位の転位線の方角はお互に平行であり、かつ結晶表面と傾斜していることがわかる。図(a)中の転位にはジグザグ模様が見られるが、これは電子線の消費効果に基くものであり、山と山との間隔は *extinction distance* ξ_g である。Hirschの本¹⁵⁾ より

$$\xi_g = \pi V / \lambda |F_g|$$

であるので $g = \bar{1}2\bar{1}0$ のときの ξ_g を求めると、約 1400 \AA であった。従って転位線のジグザグ模様からこの膜の厚さは約 $1 \mu\text{m}$ と推定される。



第6図 c -whisker 間の結晶膜中の転位。(a) : $g = \bar{1}2\bar{1}0$ のときの像, (b) : $g = 0002$ のときの像。

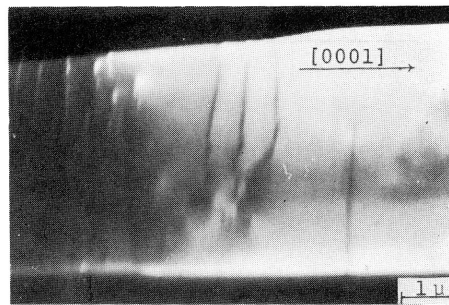


第7図 結晶膜中の転位。 $g = \bar{1}2\bar{1}0$ のときの (a) : 明視野像, (b) : 暗視野像。

第8図は c -whisker 自身の中に稀に見られた転位の一例である。殆どの転位線は basal 面と平行で、結晶表面とわずかに傾いていると思われる。

前に述べたように, *c*-whisker, *c*-whisker 間の結晶膜は殆ど **dislocation free** であり, 第 6, 7, 8 図に示した転位は, 試料結晶が電顕用試料メッシュに接着させられた附近にのみ稀に見られたものの例である。従ってこれらの転位は, 結晶をメッシュに貼りつけるときに結晶がうけた塑性変形に起因するものと考えられる。

3.1., 3.2.で示したように, *c*-whisker や whisker 間の結晶膜中に転位が存在すればその像は必ず観察されたにもかゝらず, *c*-whisker 中には軸転位が 1 本も見られなかったことから, 軸転位は存在しなかったと結論せざるを得ない。また透過観察可能な薄い **initial needle** 中にも転位を見出すことはできなかった。



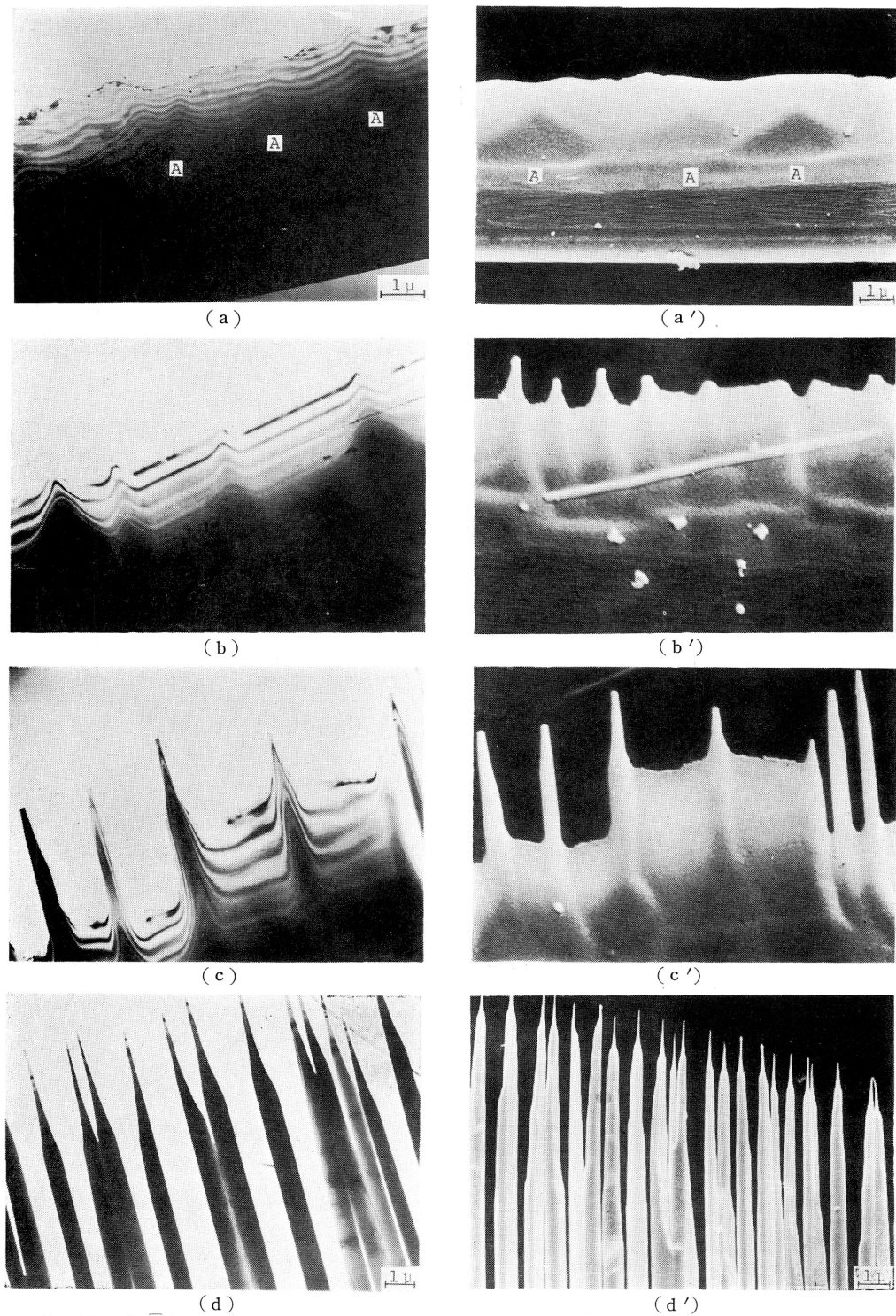
第 8 図 塑性変形によって *c*-whisker 中に生じた転位。

4. 結晶の外形観察

櫛状結晶の成長機構についての考察を行うため, 我々は転位像観察と関連した透過電顕による外形観察とともに, 走査電顕による外形の詳細な観察を行った。

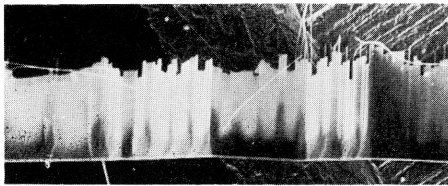
第 1 図に示したような櫛状結晶の成長先端附近を, 先端に近い方から順に撮った電顕写真とそれらとは同じ場所の走査電顕写真とを第 9 図に示した。図(a)および(a')は **initial needle** の成長先端に一番近い部分の写真で, **initial needle** の側面上に A で示したように, 三角形の形をしたわずかな凸部 (ふくらみ) が現われているのが見られる。図(b), (b')は(a), (a')より先端から離れた部分の写真で, 上記三角形型のふくらみの先端部分に, $1 \sim 2 \mu\text{m}$ の間隔で *c*-whisker が伸びはじめているのが見られる。このふくらみと *c*-whisker 成長とは常に対応しており, 図(c)や(c')でも, かなり成長した *c*-whisker の根元の部分には必ずこのふくらみが見られる。また図(d), (d')では数本の *c*-whisker が隔合して太い **needle** となり, 図(d')では結晶学的な面 (**prism** 面) も明瞭に現われているのが見られ, これらは前報¹⁾で報告した櫛状結晶から **ribbon** 状結晶への成長過程を示すものである。またこのような部分に, 3.1.で示した転位が数多く見られる。

一般的には, **initial needle** は第 1 図のように直線的に, 判然とその存在が認められるように成長しているが, 例外的な場合もかなり存在する。その一つの例が第 10 図(a)に示されてい

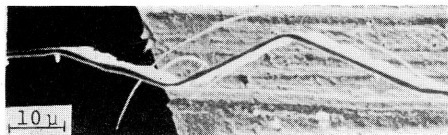


第9図 $(11\bar{2}0)$ 櫛状結晶の成長先端近くの透過電顕写真と走査電顕写真。(a), (a') が先端に一番近く, (d), (d') が一番遠い。(a), (a') : Aは結晶側面上の三角形のふくらみ。(b), (b') : ふくらみからの c -whisker の伸びはじめ。(c), (c') : c -whisker とそれらの間の gap を埋めている薄膜結晶。(d), (d') : 数本の c -whisker の融合。

る。この結晶では **initial needle** の存在が判然とは認められず, **c-whisker** の下方のふくらみの部分に接した次のふくらみから再び **c-whisker** が成長し, **c-whisker** 間を結晶薄膜が埋めている。図(b)はこの結晶を下(*c* 軸方向)から見た走査電顕写真で, 櫛状結晶はそれぞれが 60° の角度をなすジグザグ型の結晶から成立っていることがわかる。この種結晶はまれにしは見られなかった。第11図は **AB** を境にしてその両側で **c-whisker** の向きが逆転している。これは **prism** 面上で **inversion twin** が生じたためであろう。**ZnO** 結晶では **inversion twin** が, **prism** 面を境にして生じやすいことは, 前報¹¹⁾で報告した通りである。

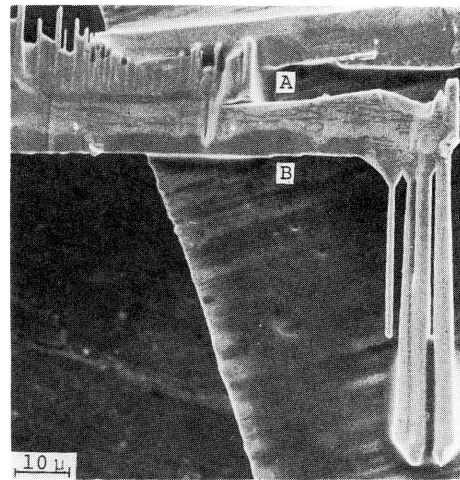


(a)



(b)

第10図: **initial needle** の存在が明瞭でない櫛状結晶の走査電顕写真, (a): 側面。(b): 下面。結晶がジグザグ型に成長しているのが認められる。



第11図 **inversion twin** によって, **c-whisker** の向きが逆転した櫛状結晶。AB は **twin** 境界。

5. 結晶成長機構

第1図に示した櫛状結晶は, その外形から先ず **initial needle** **AB** が成長し, その上に **c-whisker** が成長したように見えるので, 我々は前報¹⁾でこの結晶は千川等⁵⁾の **two axial dislocation mechanism** によって成長したものであろうと報告した。本研究も軸転位の存在を電顕で確かめてみようとして試みたものであるが, その結果から考えられる櫛状結晶成長機構を, **c-whisker** 成長と **initial needle** の成長とに分けて考察し直してみよう。

5.1. **c-whisker** 成長機構

千川等⁵⁾の成長機構に従えば, $(11\bar{2}0)$ ribbon 結晶成長の場合, $[10\bar{1}0]$ 方向の **initial needle** 中の $[0001]$, $\frac{1}{3} [2\bar{1}10]$ を **B. v.** としてもつ2本の軸転位の相互作用の結果, $[0001]$ を **B. v.** としてもつ転位が **initial needle** から **basal** 面上にすべり出し, それが結晶表面と交わるところで **half-loop** をつくり, **c-whisker** が成長する。この場合, 軸転位がすべり出す

方向, 従って *c*-whisker の成長の向きは, ZnO の結晶学的極性 (polarity) によるのではなく, 2本の転位の B. v. の向きによって決まるので, + *c*, - *c* いずれの方向に成長してもよい筈である。しかし, 我々が成長させた ZnO 櫛状結晶に見られる *c*-whisker は常に + *c* 方向に成長している。また, 転位が存在すれば観察されたにもかかわらず, *c*-whisker 成長に役立ったと思われる軸転位は1本も観察されなかったことと考え合わせて, *c*-whisker は転位機構によって成長していると結論づけ難い。

我々の観察結果から, *c*-whisker 成長は第9図に示した initial needle の prisms 面上のふくらみと密接に関係しているようである。このふくらみは prism 面上の二次元核から成長したものであろうが, initial needle の表裏両方の prism 面上の対応する場所に存在していて, あたかも分子の供給源であるかのように, ふくらみの部分から *c*-whisker が成長している。もう一つ重要なことは, *c*-whisker は常に + *c* 方向に成長していることである。我々が今まで行った ZnO 結晶成長実験で, ZnF₂ から成長させた *c*-needle¹²⁾ も, ZnSe から成長させた *c* 方向を向く hollow crystal^{13, 14)} も, いずれも + *c* 方向に成長しており, 具体的なモデルを考えることはできないけれど, *c*-whisker 成長は ZnO 分子や ZnO 結晶の極性と密接に関連していることが推察される。

5.2. initial needle の成長機構

千川等⁵⁾ や Fitzgerald 等⁶⁾ は CdS initial needle が軸転位によって成長したことを示す証拠として, 成長した板状結晶中に積層欠陥が存在することをあげている。我々の実験では, 電顕による透過観察が可能である initial needle についての観察では, そのような欠陥を見出すことはできなかった。

initial needle が軸転位機構によって成長しているのではないかと考えられる実験的証拠は, (1) 多くの櫛状結晶には, initial needle の存在が明瞭に認められる, (2) 一般的に, ZnO 結晶は *c*-whisker, *c*-needle が極端に成長しやすいにもかかわらず, [1100] 方向 ((1120) ribbon の場合) または [1210] に近い方向 ((1010) ribbon の場合) に needle が成長するということは, 軸転位機構のように, 成長が優先的に生じやすい機構が存在していなければならない, の2点をあげることができるのであろう。

これに対して, initial needle が軸転位機構によって, 結晶成長の初期段階にかなり速い速度で成長したのではなく, —この場合 needle がはじめに成長したのではないので, initial needle という言葉を用いることも適当でないが—他の機構によって成長したのではないかと考えられる実験的証拠としては次のものが挙げられる。(1) initial needle 中には, 成長に役立ったと思われる転位や, それから生じた積層欠陥も見出されなかった。(2) 第1図に示したように, 大多数の櫛状結晶では, 成長先端の方に向かって *c*-whisker が順次短くなっており, これは initial needle が成長して, 長さを増すと, その部分に直に *c*-whisker が成長し始めていることを意味する。このことは第9図(a), (a'), (b), (b') でも見られることであ

る。勿論、成長の根元部分の方の *c-whisker* の方が長いのは、*basal* 面からすべり出す転位は、根元の方から順々にすべり出すからだという反論もあろうが、もしそうだとすると、成長先端附近では転位のすべり出しがおくれるので、*c-whisker* 成長に役立つ転位が観測されやすい筈であるが、そのような転位は1本も観察されなかった。(3) 第10図に示したような結晶では、*initial needle* の存在ははっきりとは認められず、しかも結晶成長方向が途中で 60° 変っていることは、成長した *c-whisker* の *prism* 面上に二次元核が形成され、それから発達した *ledge* が次の *c-whisker* の *nucleation site* となるという Jones⁷⁾ の機構によって説明可能である。また、第11図のように、*initial needle* 中の *prism* 面を境にして *inversion twin* が生じていることも、*initial needle* が *prims* 面上への二次元核形成によって成長していくと考えることによって解釈が容易になる。

このように *initial needle* が、*initial needle* としてではなく、成長した *c-whisker* の *prism* 面上への二次元核形成によって順次形成されていくという考えは、5.1. で述べた *c-whisker* の根元にあるふくらみとも密接に関係している。すなわち、このふくらみはすでに成長した *c-whisker* の成長側の *prism* 面上に生じた二次元核から発達したものと見ることができであろう。この点は前にも述べた Jones⁷⁾ の機構と同じであるが、Jones は *prism* 面上への二次元核形成は、*c-needle* が過飽和度の高い所へ成長していった場合に生じるとしている。二次元核は過飽和度の高い所でしか形成されにくいのは勿論であるが、我々の実験では、*initial needle* の成長方向は *carrier gas* の流れとは無関係に *randum* であったので、二次元核形成に必要な過飽和度はいたるところに存在していたと見るべきであろう。

現在までの我々の *ZnO* 結晶成長実験で、*ZnF₂*^{11,12)} *ZnSe*^{13,14)}、*ZnS*^{1,2)} と *starting material* を変えると、成長した結晶の *morphology* に著しい差が認められた。この差が何に起因しているかを解き明すことは、*ZnO* 結晶では *c-whisker* が極端に成長し易いにもかかわらず、*initial needle* らしきものをつくるような成長が行われる原因を見出す手がかりになるのではないかと考えられる。

謝 辞

本研究に際して、電顕使用について御便宜をはかって下さった東大物性研の中田一郎助教授、電顕像解釈について種々御教示を頂いた京都工繊大橋本初次郎教授、名古屋大井村徹教授、物性研竹内伸助教授に謝意を表します。また走査電顕使用について、御便宜をおはかり下さった長崎大熱研林薫教授と一瀬昭豊君に対しても謝意を表します。

文 献

- 1) 岩永 浩, 柴田 昇: 長崎大学教養部紀要, 自然科学 12 (1971) 15.
- 2) H. Iwanaga and N. Shibata: Japan. J. appl. Phys. 11 (1972) 121.
- 3) H. Iwanaga and N. Shibata: Japan. J. appl. Phys. 13 (1974) 185.
- 4) J. P. Hirth and F. C. Frank: Phil. Mag. 3 (1958) 1110.
- 5) J. Chikawa and T. Nakayama: J. appl. Phys. 35 (1964) 2493.
- 6) A. G. Fitzgerald, M. Mannami, E. H. Pogson and A. D. Yoffe: J. appl. Phys. 38 (1967) 3303.
- 7) K. A. Jones: J. Crystal Growth 19 (1973) 33.
- 8) G. H. Dierssen and J. Gabor: J. Crystal Growth 16 (1972) 99.
- 9) W. Möhling and J. Heydenreich: Phys. Status solodi. 7 (1964) 155
- 10) R. J. Caveney: J. Phys.Chem. Solids 29 (1968) 851.
- 11) N. Shibata and H. Iwanaga: Japan. J. appl. Phys. 11 (1972) 775.
- 12) H. Iwanaga and N. Shibata: Japan. J. appl Phys. 6 (1967) 415.
- 13) 岩永 浩, 柴田 昇: 長崎大学教養部紀要, 自然科学 14 (1973) 11.
- 14) H. Iwanaga and N. Shibata: J. Crystal Grystal Growth 24/25 (1974) 357.
- 15) P. H. Hirsch, A. Howie, R. B. Nicholson, D. W. Pashley and M. J. Whelan: *Electron Microscopy of Thin Crystals* (Butterworth, London, 1965) p. 102.