

## ПРИБОРЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Атомные структуры на поверхности GaAs(001),  
выращенной методами молекулярно-лучевой эпитаксии

Р.З. Бахтизин, Т. Сакурай, Т. Хашицуме, К.-К. Ще

Разработана уникальная установка для исследования *in situ* с атомным разрешением поверхности твердотельных структур, выращенных методами молекулярно-лучевой эпитаксии (МЛЭ), объединяющая в пределах единой вакуумной системы сканирующий туннельный микроскоп (СТМ) на линии с камерой МЛЭ. Возможности экспериментальной техники продемонстрированы на примере изучения атомных структур на поверхности GaAs(001), выращенной с помощью МЛЭ, в широком диапазоне отношений концентраций [As]/[Ga]. Регулируя величину As покрытия на поверхности GaAs(001), удалось детально исследовать фазы  $2 \times 4-\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  и фазу  $c(4 \times 4)$ . СТМ-изображения высокого разрешения показали, что фазы  $2 \times 4-\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  в основе имеют одну и ту же единичную структуру во внешнем поверхностном слое, который состоит из двух димеров As и пары As-димерных вакансий. На основе наблюдений картин СТМ и дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО), а также результатов расчетов интенсивности дифракционных рефлексов в рамках динамической теории ДБЭО проведен анализ имеющихся структурных моделей фаз  $2 \times 4$  и предложена новая структурная модель обогащенной As поверхности GaAs(001), которая согласуется с большинством опубликованных экспериментальных результатов.

PACS numbers: 61.14.Hg, 61.16. Di, 68.55.Bd

## Содержание

1. Введение (1227).
2. Атомные структуры на поверхности грани GaAs(001) (1228).
3. Методика эксперимента (1230).
  - 3.1. Камера молекулярно-лучевой эпитаксии на линии со сканирующим туннельным микроскопом.
  - 3.2. Приготовление образцов с фазами  $2 \times 4$  и  $c(4 \times 4)$ ; технология миграционно-усиленной эпитаксии.
  - 3.3. Исследование поверхностных структур методом дифракции быстрых электронов на отражение.
  - 3.4. СТМ-исследования.
4. Результаты и их обсуждение (1232).
  - 4.1. СТМ-изображения фаз  $2 \times 4-\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$ .
  - 4.2. Анализ фаз  $2 \times 4-\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  на основе динамической теории дифракции быстрых электронов на отражение.
  - 4.3. Исследование поверхностных фазовых переходов между решетками  $c(4 \times 4)$  и  $2 \times 4-\gamma$ .

5. Структурная модель двумерных фаз  $2 \times 4-\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  (1239).
  6. Заключение (1240).
- Список литературы (1240).

## 1. Введение

Молекулярно-лучевая эпитаксия (МЛЭ) является наиболее перспективным технологическим методом, используемым для выращивания твердотельных структур, в частности, при изготовлении оптоэлектронных и СВЧ приборов, для которых существенным является наличие многослойных монокристаллических структур субмикронных размеров с различным компонентным составом, но с близкими постоянными решетки [1, 2]. МЛЭ основана на осаждении модулированных молекулярных или атомных пучков соответствующих элементов на монокристаллическую подложку, которая поддерживается при повышенной температуре в условиях сверхвысокого вакуума. Состав выращенного таким способом эпитаксиального слоя и уровень его легирования определяются относительными скоростями прибывающих компонент (элементов) и атомов легирующей примеси. Скорость роста слоистых структур при использовании МЛЭ обычно составляет 1–3 мкм/ч (приблизительно 1 монослой/с), т.е. оказывается достаточно низкой для обеспечения заметной поверхностной диффузии падающих частиц по растущей поверхности, что позволяет управлять ростом тонких пленок с высокой (до атомных размеров) точностью. Несомненно, что для получения методом МЛЭ высококачественных слоистых структур с эпитаксиальными слоями (так называемых сверхреше-

Р.З. Бахтизин. Башкирский государственный университет,  
450074 Уфа, Россия  
Тел./Факс (3472) 503-085  
E-mail: raouf@online.ru

Т. Сакурай, К.-К. Ще. Институт проблем материаловедения  
университета Тохоку, Сендай 980-77, Япония  
Тел. +81-22-215-2021. Факс +81-22-215-2020  
E-mail: sakurai@apfim.imr.tohoku.ac.jp

Т. Хашицуме. Лаборатория передовых исследований Хитахи,  
Сайтама 350-03, Япония  
Тел. +81-492-96-8111. Факс +81-492-96-6006  
E-mail: tomi@harl.hitachi.co.jp

Статья поступила 17 марта 1997 г., после доработки 10 июня 1997 г.

ток) принципиально важным является непрерывный контроль стехиометрии поверхностного слоя и его структуры с одновременным изучением микроскопических процессов, определяющих механизм роста кристаллов.

Поскольку МЛЭ реализуется в условиях сверхвысокого вакуума, то сам процесс эпитаксиального роста в большинстве известных установок контролируется *in situ* одним из традиционных диагностических методов, таких, как дифракция быстрых электронов на отражение (ДБЭО), дифракция медленных электронов, оже-электронная спектроскопия [3]. Во многих случаях, однако, разрешающая способность этих методов оказывается недостаточной для идентификации образующихся при МЛЭ атомных структур и вида эпитаксиального роста, особенно на начальных, наиболее важных, его стадиях, поэтому представляется целесообразным использовать для этих целей сканирующую туннельную микроскопию (СТМ), наиболее эффективный метод локальной диагностики твердотельных наноструктур в реальном пространстве с атомным разрешением [4]. Первые попытки такого рода были сопряжены, однако, с необходимостью выноса образцов из камеры МЛЭ на воздух с последующим их переносом в камеру СТМ. Нам удалось преодолеть многочисленные трудности и найти удачное техническое решение по совмещению сверхвысоковакуумного СТМ с камерой МЛЭ в пределах единой вакуумной системы.

В настоящем обзоре приведено описание разработанной нами комбинированной системы МЛЭ–СТМ и пример ее использования для изучения *in situ* атомных структур на обогащенной As поверхности GaAs(001), выращенной методами МЛЭ.

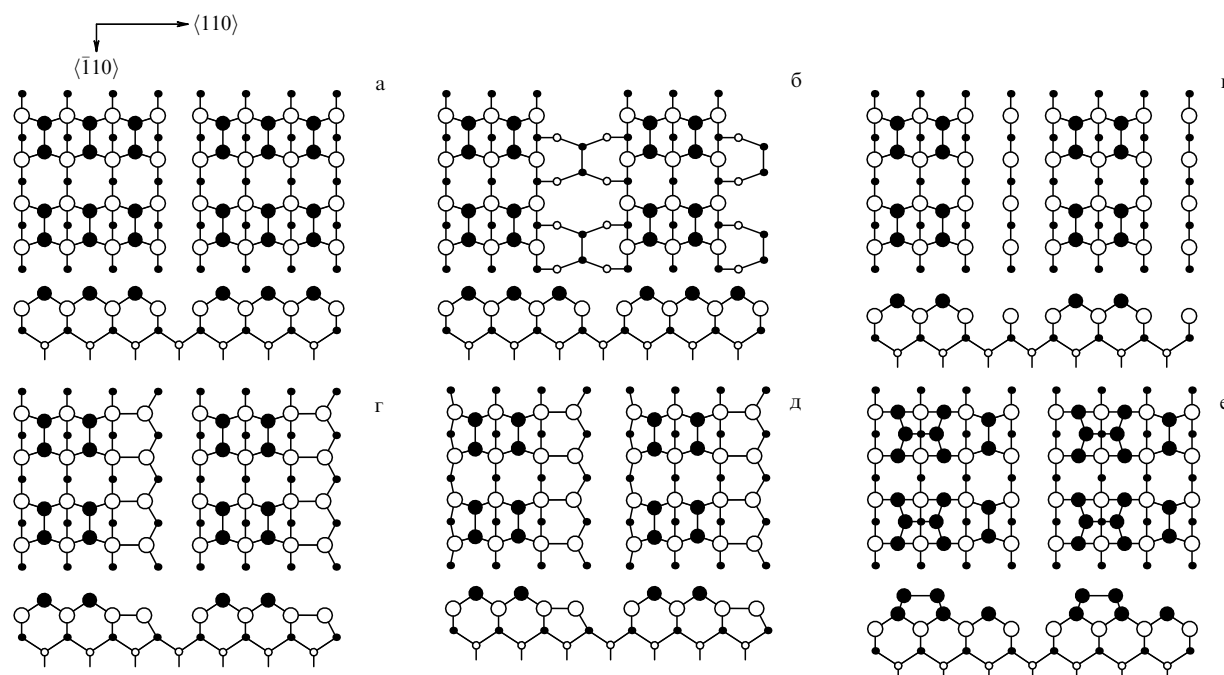
## 2. Атомные структуры на поверхности грани GaAs(001)

Атомные структуры на поверхности GaAs(001), выращенной с использованием МЛЭ, интенсивно исследуются в течение последних 20 лет благодаря их технологической важности (многие нанобъекты, такие, как квантовые точки, квантовые проволоки и т.д., а также большинство приборов на основе GaAs выращиваются на этой грани именно по методике МЛЭ) и неослабевающему научному интересу к ним [5–20]. При этом с понижением поверхностной энергии на самой грани GaAs(001) наблюдается большое количество низкоразмерных наноструктур (они могут быть сложными) и фазовых структурных переходов между ними, тесно связанными со стехиометрическим составом, которыми можно управлять, изменяя температуру образца и соотношение атомных концентраций Ga и As в потоках, т.е. условия обработки поверхности [3–5]. На поверхности GaAs(001) наблюдались различные сверхструктуры начиная с наиболее обогащенной As фазы  $c(4 \times 4)$ ,  $2 \times 4/c(2 \times 8)$ ,  $2 \times 6, \dots$  до обогащенной Ga фазы  $4 \times 2/c(8 \times 2)$ ,  $4 \times 6$  и т.д. в зависимости от величины покрытия поверхности и условий проведения МЛЭ. Поверхностные сверхструктуры, образовавшиеся в процессе МЛЭ, оказываются весьма чувствительными к стехиометрии верхнего слоя поверхности, поскольку структура полярной грани GaAs(001) сильно зависит от отношения концентраций [катион]/[анион]. Стехиометрия поверхностного слоя и его структура исследовались с

помощью различных поверхностно-чувствительных методик, таких, как ДБЭО [9–20], дифракция медленных электронов и оже-электронная спектроскопия [21, 25], фотоэлектронная спектроскопия [26–28], измерение работы выхода [25], дифракция рентгеновских лучей [29] и рентгеновских фотоэлектронов [30], дифференциальная отражательная спектроскопия [31], спектроскопия характеристических потерь энергии электронов [32], измерение интенсивности вторичных электронов [33], рассеяние ионов средних энергий [34] и СТМ [35–43]. При этом наиболее интенсивно исследованными оказались обогащенные As фазы  $2 \times 4$  и  $c(4 \times 4)$ , так как условие обогащения As является существенным для процесса МЛЭ. Несколько позже для решения вопроса о предпочтительности той или иной поверхностной структуры с точки зрения минимизации поверхностной энергии системы были использованы теоретические расчеты электронной структуры поверхности GaAs(001) [44–48].

На основе этих экспериментальных и теоретических исследований возникли некоторые общие соображения о структуре поверхностей GaAs(001)– $2 \times 4$ –As. Отметим, что в случае "идеальной" структуры нереконструированной поверхности GaAs(001)– $2 \times 4$  (т.е. структуры атомной плоскости той же ориентации, но расположенной в объеме кристалла) каждый поверхностный атом As должен иметь две оборванные связи, что энергетически невыгодно. Поэтому два смежных атома As образуют димер вдоль направления  $\langle 110 \rangle$ , что приводит к реконструкции поверхности с периодичностью  $(2 \times)$  аналогично тому, как это происходит на поверхности Si(100). В результате каждая As-димерная пара содержит две оборванные связи, энергетические уровни которых могут быть определены из *s* и *p* атомных уровней в соответствии с диаграммой Харрисона [49]. Согласно этой диаграмме энергетический уровень оборванной связи As лежит ниже максимума валентной зоны и должен быть заполнен, а энергетический уровень оборванной связи Ga лежит над минимумом зоны проводимости и должен быть пустым. Четырехкратную  $(4 \times)$  периодичность вдоль направления  $\langle 110 \rangle$  можно было попытаться объяснить на основе предположения об асимметрии димеров As [26, 27], но Чади выдвинул идею "вакансии димеров As" [44], подтвержденную позже экспериментально с помощью СТМ [35]. Образование вакансий димеров рассматривалось им как способ избежать возможного накопления заряда, что энергетически невыгодно [12]. Простейшая структура элементарной ячейки  $2 \times 4$ , позволяющая сохранить электрическую нейтральность, может быть получена после удаления по одному из каждых четырех димеров As [50].

Хотя в настоящее время считается надежно установленным, что структура  $2 \times 4$  образована из димеров As и As-димерных вакансий, существуют и другие модели элементарной ячейки структуры  $2 \times 4$ , предполагающие присутствие Ga в верхнем слое. Чади первым ввел модели As-димерных вакансий, основанные на расчетах полной энергии в рамках сильной связи, и предложил два варианта расположения вакансий в наружном поверхностном слое: три димера As и одна димерная вакансия в элементарной ячейке (рис. 1а), и два димера As и две димерные вакансии в одном элементе структуры (рис. 1б) в наружном поверхностном слое [44]. Во втором варианте одна из пар атомов Ga второго слоя также



**Рис. 1.** Основные структурные модели поверхности GaAs(001)– $2 \times 4$ . (а) Трёхмерная As-модель, (б) двухмерная As-модель и (в) двухмерная нестабильная As-модель, предложенные Чади [44], (г) двухмерная As-модель, предложенная Фарреллом и Палмстрёмом для фазы  $2 \times 4-\alpha$  [15], (д) модифицированная модель, учитывающая релаксацию второго слоя Ga, предложенная Норттрапом и Фроеном [42], (е) модель с дополнительным димером As, предложенная Фарреллом и Палмстрёмом для фазы  $2 \times 4-\gamma$  [15]. Тёмными кружочками обозначены атомы As, а светлыми — атомы Ga. Для каждой модели приведены вид сверху и вид сбоку. Величина покрытия поверхности As составляет соответственно (в долях монослоя): (а) 0,75; (б) 0,75; (в) 0,5; (г) 0,5; (д) 0,5; (е) 1,0.

должна отсутствовать. Хотя, согласно проведенным вычислениям, обе модели должны иметь почти одинаковую стабильность по энергии, модель 1б позже была отброшена Ларсеном исходя из соображений кинетики роста [14]. Впоследствии Чади предложил другую вакансионную модель, в которой во втором слое сохраняются все четыре пары атомов Ga (рис. 1в), однако полная энергия в расчете на элементарную ячейку в этом случае оказалась на 1,6 эВ больше, чем в случае моделей 1а и 1б, и она также была исключена из рассмотрения.

Франкель с сотрудниками проанализировали спектры энергетических потерь электронов для атомарного водорода, хемосорбированного на поверхности GaAs(001) со структурой  $c(2 \times 8)$ , и пришли к заключению, что в этом случае на поверхности присутствуют оба вида соединений: Ga–H и As–H; последнее обстоятельство, несомненно, доказывает существование As-димерных вакансий [32]. В результате были предложены трехмерная As-модель, подобная модели Чади, вакансионная модель с другой стехиометрией поверхности, а также модель с димеризацией второго слоя Ga, но без учета релаксации поверхности [32].

Бесспорное подтверждение As-вакансионной модели фазы  $2 \times 4$  было получено в результате первых же СТМ-наблюдений, проведенных Пашли с сотрудниками [35]. В их экспериментах образцы готовили в отдельно расположенной камере МЛЭ, а перед извлечением на воздух покрывали защитным аморфным слоем As и переносили в СТМ камеру, после чего покрытие удаляли с помощью кратковременного прогрева. СТМ-изображения продемонстрировали, что периодичность  $2 \times 4$  обусловлена регулярными рядами димеров As и As-димерных вакансий, а фаза  $c(2 \times 8)$  образуется из струк-

туры  $2 \times 4$  благодаря антифазной границе вдоль направления  $\langle \bar{1}10 \rangle$ . Анализ СТМ-изображений элементарной ячейки структуры  $2 \times 4$  также показал, что они лучше всего объясняются с помощью трехмерной As-модели Чади (рис. 1а). Позже Бигельсен с сотрудниками сумели приготовить образцы *in situ* в камере МЛЭ и сообщили, что элементарная ячейка структуры  $2 \times 4$  внешнего поверхностного слоя состоит из трех димеров As [36], подтвердив тем самым наблюдения [35]. Однако в тех случаях, когда образцы отжигались в течение более продолжительного промежутка времени или при более высоких температурах, либо выращивались при меньших значениях отношения концентраций  $[As_2]/[Ga]$  в потоках, они наблюдали структуру  $2 \times 4$ , но состоящую из двух димеров As во внешнем поверхностном слое [36].

При обсуждении критериев отбора моделей поверхности Ларсен и Чади наряду с брэгговскими отражениями предложили учитывать также структуру амплитуд интенсивностей рефлексов ДБЭО дробных порядков [14]. Используя кинематические расчеты, они показали, что если учитывать атомы As только на внешней стороне поверхностного слоя, то модели на рис. 1б, в дают незначительные интенсивности рефлексов (0 2/4). Несколько позже Фаррелл и Палмстрём (ФП) провели систематический анализ результатов всех ДБЭО экспериментов и предложили выделить в пределах реконструкции  $2 \times 4$  три фазы ( $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$ ), в зависимости от характеристик интенсивностей рефлексов ДБЭО дробного порядка (1/4, 2/4 и 3/4) и условий их приготовления [15]. Согласно результатам их анализа интенсивность рефлекса 2/4 для  $\alpha$ -фазы оказалась относительно слабой по сравнению с интенсивностями рефлексов 1/4 и 3/4, а для  $\beta$ -фазы — сильной и равной по интенсивности

рефлексам  $1/4$  и  $3/4$  и равнялась нулю для  $\gamma$ -фазы. Для подтверждения этих данных ФП был проведен кинематический расчет интенсивностей рефлексов ДБЭО и предложена структурная модель элементарной ячейки для фаз  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  внешнего поверхностного слоя (так называемая схема ФП), в которой  $\alpha$ -фаза состоит из двух димеров As (рис. 1г, с димеризацией второго слоя Ga). Позже эта модель была подвергнута тщательной проверке Нортрапом и Фроеном (НФ) [47], которые для достижения большей стабильности ввели релаксационные смещения атомов Ga второго слоя (рис. 1д). Элементарная ячейка структуры  $\beta$ -фазы в схеме ФП, по существу, описывается трехмерной As-моделью Чади (рис. 1а), а  $\gamma$ -фаза — с помощью модели, в которой дополнительный димер As расположен на поверхности  $\beta$ -фазы вдоль направления  $\langle 110 \rangle$  (рис. 1е) [15]. В соответствии со схемой ФП величина As покрытия для  $\alpha$ -фазы должна составлять 0,5 монослоя (МС), для  $\beta$ -фазы — 0,75 МС и для  $\gamma$ -фазы — 1,0 МС, что согласуется со значениями, изначально предполагавшимися из условий приготовления каждой фазы.

С тех пор схема ФП использовалась многими исследователями, а трех- или двухмерные As-модели выбирались в зависимости от экспериментальных условий и полученных результатов. Таким образом, важная проблема структуры поверхности GaAs(001)– $2 \times 4$  казалась решенной [17–20, 31, 46, 47]. Однако совсем недавно Хеллер и Лагалли, основываясь на результатах, проведенных *in situ* СТМ наблюдений, сообщили, что доминирующей во внешнем поверхностном слое является элементарная ячейка с двумя димерами As, а ячейка с тремя димерами As может существовать лишь при определенных внешних условиях [38]. Вассермайер и Бреслер-Хилл подтвердили, что в их экспериментах преобладающей была элементарная ячейка также с двумя димерами As [39]. Вместе с тем Галлафер с сотрудниками, проведя анализ своих СТМ-изображений, поддержали модель с тремя димерами As в элементарной ячейке [40]. И наконец, Фалта с сотрудниками провели серию экспериментов по спектроскопии рассеяния ионов средних энергий на поверхности GaAs(001), выращенной с помощью МЛЭ вне аналитической камеры, и предложили модель, в которой, вопреки общепринятым представлениям, первый слой фазы  $2 \times 4$  может содержать как атомы Ga, так и атомы As [34].

Осознавая нерешенность (и, вместе с тем, исключительную важность этой проблемы), мы провели систематические исследования структур фаз  $2 \times 4$ – $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  на поверхности GaAs(001) с использованием преимуществ разработанной нами комбинированной установки МЛЭ–СТМ [41–43] и сравнение полученных результатов с результатами других исследователей и с имеющимися структурными моделями. Во многих случаях нами применялась также методика миграционно-усиленной эпитаксии (МУЭ) [51], которая давала возможность управлять поверхностной стехиометрией в широких пределах, от обогащенной As до обогащенной Ga.

Анализ СТМ-изображений высокого разрешения и картин ДБЭО поверхности GaAs(001) и сопоставление их с результатами динамических расчетов интенсивностей рефлексов ДБЭО, учитывающими эффекты многократного рассеяния, позволили нам предложить унифицированную модель элементарной ячейки структуры

$2 \times 4$ , которая состоит из двух димеров As и пары димерных вакансий во внешнем поверхностном слое [43].

### 3. Методика эксперимента

#### 3.1. Камера молекулярно-лучевой эпитаксии на линии со сканирующим туннельным микроскопом

Эксперименты проводили в разработанной нами комбинированной установке, состоящей из сверхвысоковакуумного полевого ионного сканирующего туннельного микроскопа [52] на линии со специально сконструированной камерой МЛЭ фирмы ULVAC Japan, Ltd., со встроенным электронографом быстрых электронов на отражение для экспресс-контроля и управления процессом роста поверхности на подложке [53]. Внешний вид установки приведен на рис. 2. Камера МЛЭ включает в себя шесть ячеек Кнудсена, каждая со своей заслонкой, которые независимо управляются с помощью микро-ЭВМ. Два расположенных горизонтально механических устройства перемещения с возможностью поворота на  $90^\circ$  (указаны стрелкой), позволяли осуществлять быструю транспортировку образца между МЛЭ и СТМ секциями, не нарушая вакуумных условий. Базовое давление в СТМ и МЛЭ камерах составляло соответственно  $4 \times 10^{-11}$  и  $1 \times 10^{-10}$  торр. Качество сканирующих острий, имеющее принципиальное значение для получения атомного разрешения, контролировалось на атомном уровне с помощью встроенного миниатюрного полевого ионного микроскопа [52, 54], что было особенно важно, учитывая относительно высокое давление паров As и возможность их попадания на поверхность зонда.

Образцы GaAs(001) *n*-типа, легированные Si ( $1 \times 10^{18}$  см $^{-3}$ ), размером  $4 \times 10$  мм $^2$  нарезали из пластин, ориентированных в нужном кристаллографическом направлении, химически протравливались в стандартной смеси  $\text{H}_2\text{SO}_4:\text{H}_2\text{O}_2:\text{DI H}_2\text{O}$  (в соотношении 4:1:1) и закреплялись в Ta-держателе с помощью индиевого припоя, а затем обезгаживались в камере МЛЭ в течение приблизительно 10 ч при  $400^\circ\text{C}$ . Поверхностный слой окисла удаляли в процессе отжига в потоке  $\text{As}_4$  при  $600^\circ\text{C}$  [7, 9], после чего с помощью традиционной

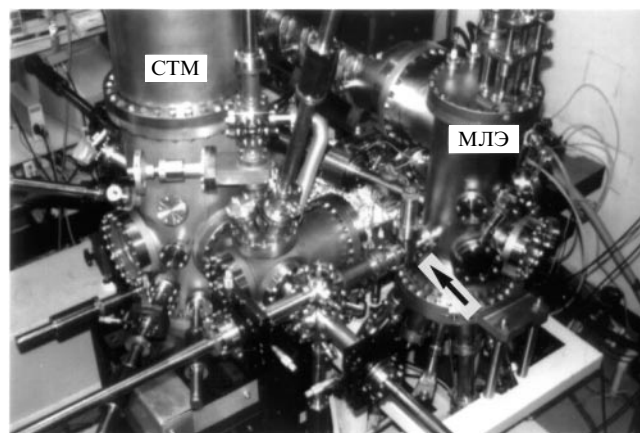


Рис. 2. Общий вид комбинированной установки: сверхвысоковакуумный сканирующий туннельный микроскоп — камера молекулярно-лучевой эпитаксии. Стрелкой показано устройство транспортировки образца между секциями СТМ и МЛЭ.

МЛЭ методики при оптимальной температуре роста 540–630 °С выращивался буферный слой GaAs n-типа (также легированный Si) толщиной 0,5 ÷ 1,0 мкм при соотношении концентраций  $[As_4]/[Ga] \simeq 30$  и скорости роста 0,15 мкм/ч. Процесс роста мог контролироваться путем измерения осцилляций интенсивности рефлексов ДБЭО [2, 3, 7]. Высокая скорость охлаждения использовавшейся аппаратуры позволяла исследовать *in situ* с помощью СТМ различные поверхностные фазы в процессе их роста. Быстрое охлаждение образца достигалось за счет его быстрого удаления вместе с держателем из камеры МЛЭ и перемещения в СТМ камеру (обычно за 2–3 с). С помощью инфракрасного пирометра была измерена скорость охлаждения держателя образца, которая оказалась примерно равной 50 °С/с. Уровень легирования Si был откалиброван с помощью масс-спектрометра вторичных ионов и поддерживался на уровне  $\leq 1,5 \times 10^{18} \text{ см}^{-3}$ , чтобы свести к минимуму концентрацию поверхностных дефектов, образованных легирующими примесями [37].

### 3.2. Приготовление образцов с фазами $2 \times 4$ и $c(4 \times 4)$ ; технология миграционно-усиленной эпитаксии

Мы использовали методику подготовки образцов, аналогичную той, которую применяли ФП [15], и получили профили интенсивностей рефлексов ДБЭО дробного порядка 1/4, 2/4 и 3/4, которые в целом согласуются с описанными ими результатами. Наиболее стабильная из всех  $\beta$ -фаза получалась путем отжига подложки при температуре роста 530 ÷ 630 °С и поддержании на одном и том же уровне концентрации  $As_4$  в потоке до тех пор, пока интенсивность рефлекса 2/4 не возрастала и становилась сравнимой с интенсивностями рефлексов 1/4 и 3/4. Для приготовления фаз  $c(4 \times 4)$  и  $2 \times 4$  использовали три различных способа (см. таблицу):

1. Фазы  $\alpha$ ,  $\beta$  и  $c(4 \times 4)$  получали путем отжига в течение нескольких минут подложки, которая первоначально показывала наличие  $\beta$ -фазы, соответственно при 640 °С, 510 °С и ниже 490 °С, поддерживая неизменным поток  $As_4$ . Учитывая высокое давление паров As, наиболее обогащенной As должна быть фаза  $c(4 \times 4)$ .

2. Фазы  $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  также можно было получить из фазы  $c(4 \times 4)$  путем прогрева подложки соответственно при 300 °С, 390 °С и 460 °С, но в отсутствие потока  $As_4$  [36].

3. Упомянутые выше фазы получали также с помощью методики МУЭ, разработанной Хорикоши с сотрудниками [51], которая применялась наряду с традиционным МЛЭ ростом. В режиме МУЭ (рис. 3) потоки  $As_4$  и Ga поочередно снабжают материал подложку (за счет попеременного открывания Ga и As заслонок), что значительно (примерно в 10 раз) увеличивает миграционную длину атомов Ga по сравнению с обычной МЛЭ:  $L_{Ga} = L_{\text{without As}}/L_{\text{with As}} = 9,5$ . Это обстоятельство делает методику МУЭ весьма перспективной, так как рельеф

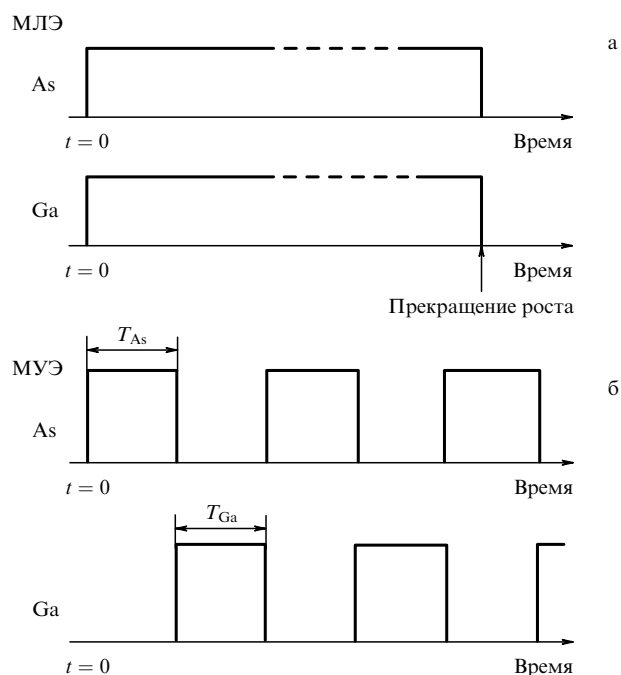


Рис. 3. Временные диаграммы работы заслонок для As- и Ga-ячеек Кнудсена при молекулярно-лучевой эпитаксии (а) и миграционно-усиленной эпитаксии (б).

поверхности оказывается достаточно гладким, чтобы наблюдать атомную структуру с помощью СТМ сразу после резкого охлаждения образца после завершения роста [42].

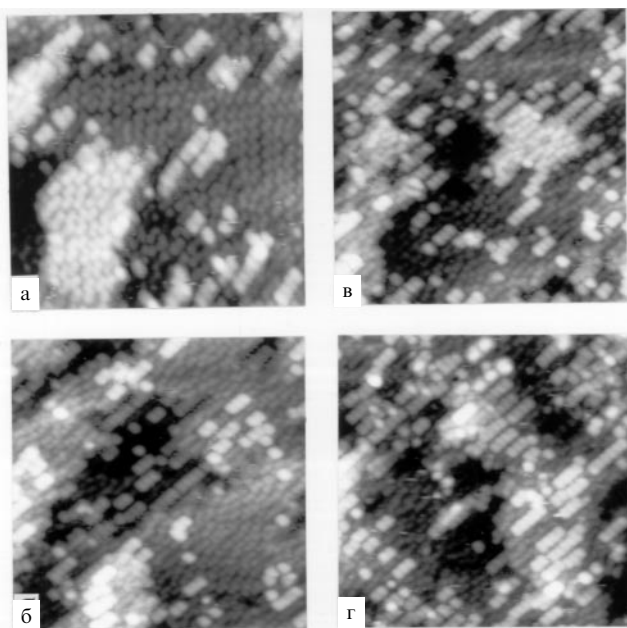
Благодаря высокому давлению паров As температура образца и соотношение концентраций  $[As_4]/[Ga]$  в потоке в очень сильной степени влияют на стехиометрию поверхностного слоя. Например, в методе (3) эпитаксиальный рост происходит в условиях, когда к поверхности одновременно поставляются атомы Ga и As, тогда как в методе (2) атомы As непрерывно десорбируются с поверхности, а в методе (1) поверхность находится под воздействием установившегося потока  $As_4$ . Вместе с тем все три метода предполагают значительный массоперенос атомов As и Ga к поверхности, а также диффузию атомов по самой поверхности. Как только атомы As, оказавшиеся на поверхности, начинают по ней мигрировать атомы Ga, находившиеся до этого во втором слое, оказываются на границе с вакуумом и становятся высокоподвижными. Поэтому в процессе приготовления фаз  $c(4 \times 4)$  и  $2 \times 4$  разумно было ожидать достаточно высокие скорости поверхностной диффузии атомов As и Ga. Таким образом, высококачественные поверхности с большими доменами можно было вырастить при относительно низких температурах, одновре-

Таблица. Методы приготовления образцов\*

Метод	$\alpha$ -фаза	$\beta$ -фаза	$\gamma$ -фаза	Фаза $c(4 \times 4)$
Отжиг в потоке $As_4$	640 °С	530–630 °С	510 °С	490 °С
Отжиг фазы $c(4 \times 4)$	460 °С	390 °С	300 °С	—
без потока $As_4$	—	—	—	—
МУЭ при 500 °С	—	—	$As_4/Ga = 12:1$	$As_4/Ga = 20:1$

\* Буферный слой: отношение концентраций  $[As_4]/[Ga]$  в потоке приблизительно равно 30; скорость роста — 0,15 мкм/ч; температура роста и десорбции окисла — 600 °С.

менно управляя поверхностной стехиометрией за счет регулировки длительности открывания заслонок  $T_{As}$  и  $T_{Ga}$  (см. рис. 3). На рисунке 4 приведена последовательность СТМ-изображений, показывающих, как изменяется поверхность GaAs(001) по мере увеличения отношения концентраций  $[As_4]/[Ga]$  в потоке с 20:1 для получения фазы  $c(4 \times 4)$  (рис. 4а) до 15:1 для смеси фазы  $2 \times 4$  и  $\gamma$ -фазы (рис. 4г) при температуре образца  $500^\circ\text{C}$  [42]. Подобным же образом мы могли получить фазу  $2 \times 4-\gamma$  при отношении концентраций  $[As_4]/[Ga]$  в потоке 12:1.



**Рис. 4.** Последовательность СТМ-изображений, полученных при исследовании перехода от As-обогащенной фазы  $c(4 \times 4)$  к  $\gamma$ -фазе с использованием методики МУЭ, позволяющей управлять стехиометрией поверхности GaAs. Отношение концентраций  $[As_4]/[Ga]$  в потоке составляло: (а) 20:1, (б) 18:1, (в) 17:1 и (г) 15:1. Напряжение между образцом и зондирующим острием  $V_s = -2,5$  В, туннельный ток  $I_t = 2,0 \times 10^{-11}$  А, площадь сканирования  $260 \text{ \AA} \times 260 \text{ \AA}$ .

### 3.3. Исследование поверхностных структур методом дифракции быстрых электронов на отражение

Для количественного сравнения теории с экспериментальными данными использовалась наружная фотометрическая система, состоящая из откалиброванного фотоэлектронного умножителя с прицельным точечным входом и волоконнооптического тракта, позволявших измерять интенсивности рефлексов ДБЭО. При этом регистрировалась не только общая интенсивность, но и ее угловое распределение, т.е. профили интенсивности рефлексов. Профили интенсивности измерялись как в процессе приготовления образцов (т.е. при повышенных температурах), так и после проведения СТМ-исследований (т.е. при комнатной температуре), причем было обнаружено, что интенсивности рефлексов в обоих случаях оказались практически одинаковыми. Это означает, что скорость закалки была достаточно высокой при малой теплоемкости держателя образца. Кинетическая энергия электронов в пучке составляла около 10 кэВ, а величина угла падения (азимут) была выбрана равной

$1,6^\circ \pm 0,2^\circ$  относительно направления  $\langle \bar{1}10 \rangle$ . В работе [15] ФП сообщали, что для минимизации нежелательных эффектов многократного рассеяния они использовали угол падения  $0,07^\circ$  (т.е. 1,3 мрад), что, однако, вызывает сомнения, так как из простой зависимости между углом падения и интенсивностью ДБЭО рефлексов следует, что для получения рефлексов 3/4 или более высокого порядка угол падения должен быть больше, чем, по крайней мере,  $1,2^\circ$ . При меньших углах падения перекрытие сферы Эвальда с линиями (т.е. стержнями) обратной решетки, связанными с нулевой зоной Лауэ, становится еще меньше и при углах падения порядка  $1^\circ$ , когда нулевая зона Лауэ практически касается сферы Эвальда, появляются тонкие вытянутые рефлексы, являющиеся на самом деле изображением отрезков стержней обратной решетки. В этом случае наблюдение рефлексов нулевой зоны Лауэ возможно, если только уширение стержней обратной решетки, вызванное несовершенствами самой поверхности, оказывается достаточным для пересечения их со сферой Эвальда. Но тогда мы не можем надежно анализировать относительные интенсивности дифракционных рефлексов, поскольку сфера Эвальда не пересекает центр стержней обратной решетки. Угол падения  $1,6^\circ$  был выбран в данной работе именно из этих соображений [49].

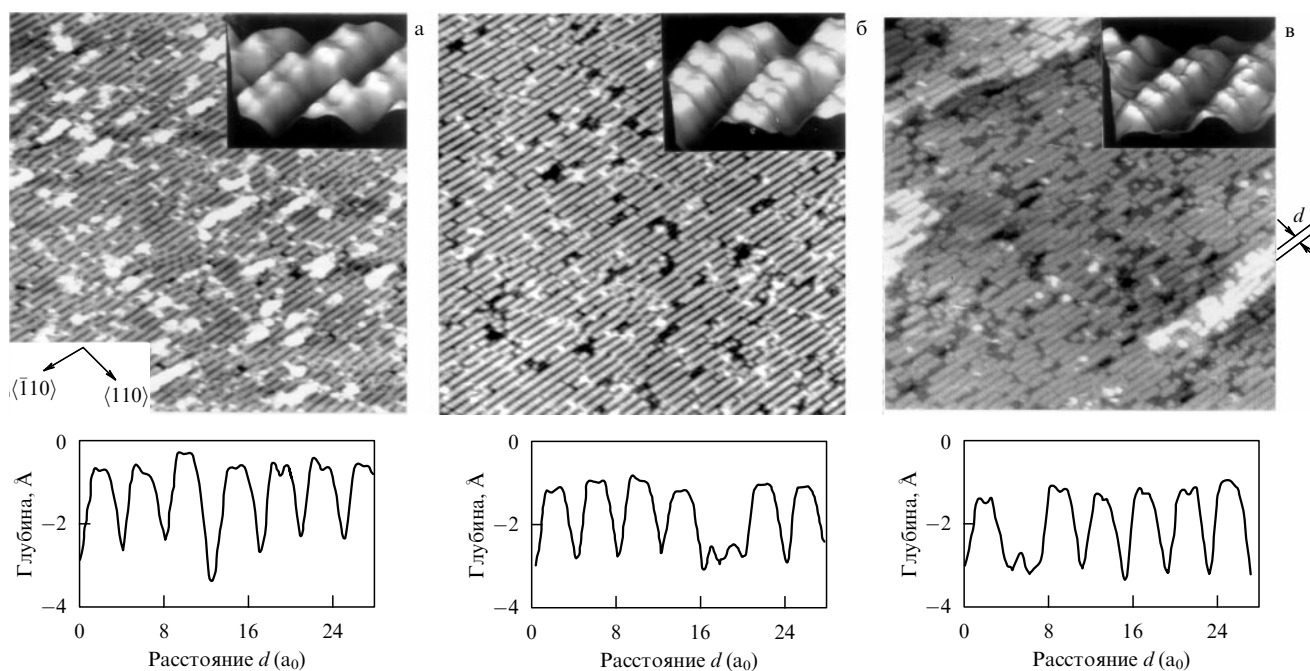
### 3.4. СТМ-исследования

Детали СТМ экспериментов подробно описаны в [52,54]. Все СТМ-изображения получали при напряжениях смещения на образце  $V_s = -3,5 \div -2,0$  В относительно заземленного острия и постоянном туннельном токе  $I_t = 2 \times 10^{-11}$  А = 20 пА. Обычно в экспериментах сканирующая площадь находилась в диапазоне  $20 \div 12000 \text{ \AA}^2$ . Мы неоднократно наблюдали, что туннелирование в незаполненные состояния образца ( $V_s > 0$ ) оказывается нестабильным или приводит лишь к ухудшению разрешения для обогащенной As фазы  $2 \times 4$  на поверхности GaAs(001) в отличие от поверхности GaAs(110) [55], а поддержание низкого уровня легирования только усиливало этот эффект. Впервые эти особенности были отмечены и обсуждены Пашли [35]. Вассермайеру удалось получить изображение фазы  $2 \times 4$  на поверхности образца p-типа GaAs, легированного Ве, в так называемом режиме "dual mode" (т.е. при попеременном включении положительного и отрицательного напряжения смещения) и показать, что этот эффект относится к разнице в положении закрепленного (благодаря "пиннингу") уровня Ферми и индуцированного сканирующим острием изгиба зон [39]. Вклад в туннельный ток (заполненных состояний) в этом случае приписывается одиночным парам состояний, локализованным на димерах As [39, 40].

## 4. Результаты и их обсуждение

### 4.1. СТМ-изображения фаз $2 \times 4-\alpha$ , $\beta$ и $\gamma$

На рисунке 5а–в приведены типичные СТМ-изображения фаз  $2 \times 4-\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  со вставками, показывающими увеличенные изображения небольших участков поверхности GaAs(001)– $2 \times 4$ , и характерные профили сканирования поверхности, измеренные вдоль направления  $\langle 110 \rangle$ . Яркие выступы на изображениях располагаются вдоль направления  $\langle \bar{1}10 \rangle$  на расстоянии  $d = 4a_0$  друг от



**Рис. 5.** Типичные СТМ-изображения фаз  $\alpha$  (а),  $\beta$  (б) и  $\gamma$  (в) на поверхности GaAs(001)– $2 \times 4$  (площадь сканирования  $600 \text{ \AA} \times 900 \text{ \AA}$ ) вместе со вставками, показывающими увеличенные изображения ее деталей в трехмерном представлении, и профили сканирования вдоль направления  $\langle 110 \rangle$ . Элементарные ячейки структуры  $2 \times 4$  во всех трех фазах состоят из двух димеров As и двух димерных вакансий;  $V_s = -3,0 \text{ В}$ ,  $I_t = 2,0 \times 10^{-11} \text{ А}$ .

друга (здесь  $a_0 = 4,0 \text{ \AA}$  — единичное расстояние на поверхности GaAs(001)– $1 \times 1$ , измеренное вдоль направления  $\langle 110 \rangle$ ), и они отделены друг от друга на расстояние  $2a_0$  в направлении  $\langle \bar{1}10 \rangle$ , образуя структуру  $2 \times 4$  с элементарной ячейкой размером  $8 \times 16 \text{ \AA}^2$  [35–40]. Темные линии между ними рассматриваются нами как области As-димерных вакансий, что не противоречит предположению Пашли [35].

Мы наблюдали несколько типов дефектов из обсуждавшихся ранее [35]:

1) полные As-димерные вакансии, которые образуют темные области, отстоящие на расстояние  $2a_0$  друг от друга вдоль направления  $\langle \bar{1}10 \rangle$ ;

2) сдвиг элементарных ячеек структуры  $2 \times 4$  на  $a_0$  вдоль направления  $\langle 110 \rangle$ , ответственный за образование фаз  $c(2 \times 8)$ ;

3) сдвиг элементарных ячеек структуры  $2 \times 4$  вдоль направления  $\langle 110 \rangle$  на  $a_0$ , в результате которого образуются повторяющиеся изломы ступеней и формируется внефазная доменная граница с периодичностью  $4 \times$ . Дефекты типа 1) являются причиной образования элементарных ячеек структуры  $2 \times 4$ , отделенных друг от друга на расстояние  $d = 8a_0$ , измеренное вдоль направления  $\langle 110 \rangle$  (определение величины  $d$  дано на рис. 5в). Участвовать в образовании элементарных ячеек  $2 \times 4$ , отстоящих друг от друга на расстояние  $d = 3a_0$  и  $5a_0$ , могут только те изломы, т.е. дефекты типа 3), которые не выровнены вдоль направления  $\langle 110 \rangle$ .

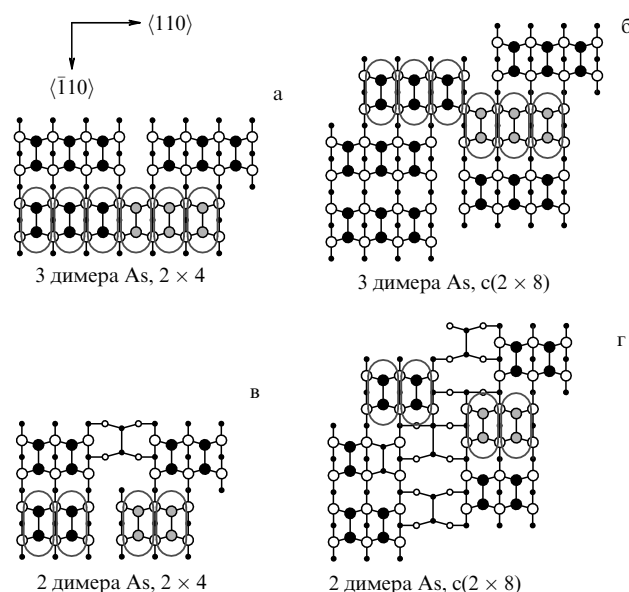
На увеличенных СТМ-изображениях небольших областей и соответствующих им контурах профилей сканирования (вставки на рис. 5) отчетливо видно, что элементарные ячейки фаз  $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  структуры  $2 \times 4$  внешнего поверхностного слоя состоят из двух димеров As и двух димерных вакансий [43]. Однако, согласно

проведенному нами детальному анализу, расстояние между двумя выступами равно не точно  $a_0$ , а превышает его приблизительно на 15 %. Поскольку СТМ-изображения отображают распределение электронной плотности состояний, а не истинное расположение атомов, то это различие позволяет предположить, что положения максимумов плотности состояний несколько смещены от положений димеров As в направлении  $\langle 110 \rangle$ ; аналогичный результат был воспроизведен в расчетах. Оно для трехмерной As-модели [46]. Это обстоятельство могло бы частично объяснить причину неправильной интерпретации СТМ-изображений с помощью трехмерной As-модели в ранних работах.

Другая причина может состоять в том, что некоторые авторы измеряли полную ширину ярко изображаемых в СТМ димеров As в направлении  $\langle 110 \rangle$ , ошибочно полагая, что эта ширина пропорциональна числу димеров As в элементарной ячейке, в то время как разрешение, с которым получали СТМ-изображения, в действительности было явно недостаточным, чтобы наблюдать отдельные димеры As. Таким образом, эта процедура была заведомо неверна. Кроме того, для корректной интерпретации изображений число горбов и промежутков между ними в элементарной ячейке должно быть тщательно проанализировано.

Мы вывели простое правило для правильной интерпретации СТМ-изображений, которое можно использовать даже в случае СТМ-изображений с довольно плохим разрешением. Это правило основано на зависимости между числом димеров As в элементарной ячейке структуры  $2 \times 4$  на внешней стороне поверхностного слоя и геометрией излома ступени. As-димерный излом получается в результате поперечной трансляции на единичное расстояние  $a_0$  в направлении  $\langle 110 \rangle$ . Поэтому, если

элементарные ячейки  $2 \times 4$  или  $c(2 \times 8)$  состоят из трех димеров As (рис. 6а,б), то изображение димеров As должно казаться непрерывным и в области излома, но если ячейка состоит из двух димеров As (рис. 6в,г), то между двумя элементарными ячейками должен существовать интервал  $a_0$ . Использование этого правила, а также результатов исследования структуры излома, позволило нам исключить из рассмотрения трехмерную As-модель фазы  $2 \times 4$ . Действительно, результаты интерпретации всех ранее опубликованных СТМ-изображений, в которых применялась трехмерная As-модель, не смогли пройти этот тест и их следует правильно трактовать на основе двухмерной As-модели.



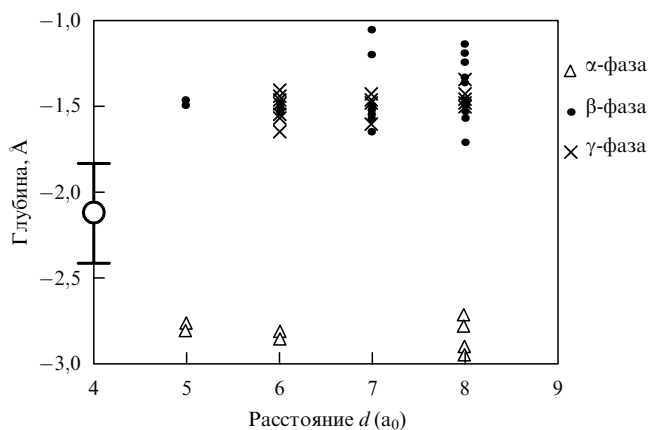
**Рис. 6.** Геометрические схемы размещения атомов на СТМ-изображениях, показывающие зависимость между расположением изломов ступеней и димеров As для фаз  $2 \times 4$  и  $c(2 \times 8)$ , основанные на двух- и трехмерных As-моделях. Если элементарная ячейка состоит из трех димеров As, то они непосредственно соприкасаются с примыкающими димерами As, находящимися около изломов; если элементарная ячейка состоит из двух димеров As, то между ними возникает промежуток, равный ширине димера As.

В пределах  $\beta$ -фазы (рис. 5б) ряды димерных вакансий являются прямыми и распространяются в среднем на расстояние свыше  $300 \text{ \AA}$  вдоль направления  $\langle 110 \rangle$  перед любым изломом. Сами изломы проявляют тенденцию к выравниванию в направлении  $\langle 110 \rangle$ , образуя большие домены, простирающиеся до  $3000 \text{ \AA}$  вдоль направления  $\langle 110 \rangle$ , и демонстрируя тем самым высокую степень упорядоченности в  $\beta$ -фазе [41]. В  $\alpha$ -фазе (рис. 5а) ряды димерных вакансий регулярно прерываются изломами в направлении  $\langle 110 \rangle$  через определенное количество димерных длин. Эти изломы выстраиваются в направлении  $\langle 110 \rangle$  подобно тому, как это было в  $\beta$ -фазе. Размеры домена  $\alpha$ -фазы обычно составляют  $60 \text{ \AA}$  в направлении  $\langle 110 \rangle$  и  $500 \text{ \AA}$  — в направлении  $\langle 110 \rangle$ . В  $\gamma$ -фазе плотность изломов в направлении  $\langle 110 \rangle$  почти такая же, как и в случае  $\alpha$ -фазы, но сами изломы расположены хаотично и не показывают никакого упорядочения в направлении  $\langle 110 \rangle$ , характерного для  $\alpha$ -фазы. В  $\gamma$ -фазе наблюдается

также значительное количество открытых участков, в которых во внешнем поверхностном слое димеры As отсутствуют, и проступает структура нижележащей террасы. Размеры домена  $\gamma$ -фазы на рис. 5в составляют приблизительно  $60 \text{ \AA}$  и  $100 \text{ \AA}$  в направлениях  $\langle 110 \rangle$  и  $\langle 110 \rangle$  соответственно, и они зависят от условий роста.

Мы также исследовали распределение промежутков  $d$ , разделяющих соседние ячейки  $2 \times 4$  в направлении  $\langle 110 \rangle$ . Для  $\beta$ -фазы преобладающим оказался промежуток  $d = 4a_0$  (98 %) с небольшими фракциями промежутков  $d = 3a_0$  (< 1 %) и  $5a_0$  (< 1 %). Для  $\alpha$ -фазы результат оказался почти таким же, как и для  $\beta$ -фазы, но с большими долями промежутков  $3a_0$  (8 %) и  $5a_0$  (4 %), что означает несколько большую плотность изломов по сравнению с  $\beta$ -фазой. Для  $\gamma$ -фазы наблюдались значительные изменения в распределении  $d$  в зависимости от условий приготовления образца. Распределение промежутков  $d$  для поверхности, показанной на рис. 5в, оказалось следующим:  $4a_0$  — 63 %,  $7a_0$  — 15 %,  $3a_0$  — 8 %,  $5a_0$  — 3 % и больше  $7a_0$  — 11 %. Этот результат ясно демонстрирует, что  $\gamma$ -фаза характеризуется участками маленьких размеров со структурой  $2 \times 4$ , отделенными друг от друга открытыми участками с характерными размерами  $d = 7a_0$ .

Количественный анализ СТМ данных может дать полезную информацию и о подповерхностных структурах. Профили сканирования СТМ-изображений по глубине, измеренные в направлении  $\langle 110 \rangle$  для фаз  $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$ , показывают значительные различия, особенно между фазами  $\alpha$  и  $\beta$  ( $\gamma$ ). Обычно в  $\alpha$ -фазе (т.е. на глубине профиля, показанного на рис. 5а) мы не видим никакой структуры между димерами, в то время как области димерных вакансий фаз  $\beta$  и  $\gamma$  (т.е. на глубине профилей, показанных на рис. 5б, в) регулярно наблюдаем одну или две слабые линии выступов. На рисунке 7 приведен суммарный график глубины профиля в As-димерной вакансии, измеренной от положения димеров As во внешнем поверхностном слое, как функции величины промежутка  $d$  между соседними элементарными ячейками  $2 \times 4$ , из которого видно, что значение глубины  $h$  для регулярного участка со структурой  $2 \times 4$  при  $d = 4a_0$  для всех трех фаз  $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  равно  $2,1 \pm 0,3 \text{ \AA}$ . Это значение существенно меньше, чем ожидавшаяся величина



**Рис. 7.** Зависимости глубины области димерной вакансии от величины промежутка  $d$  (в единицах  $a_0$ ) для трех различных фаз. Глубина вакансии измерялась от положения верхнего слоя димеров As.



$h = 2,8 \text{ \AA}$  — глубина двойного поверхностного слоя GaAs(001), что можно объяснить проявлением так называемого "tip effect": отношение глубины области вакансии к ее ширине в этом случае слишком велико, чтобы можно было отобразить дно димерной вакансии. Однако в тех случаях, когда указанный промежуток оказывался достаточно большим,  $d > 5a_0$ , мы получали разумное значение для глубины в  $\alpha$ -фазе, равное приблизительно  $h = 2,8 \text{ \AA}$ , тогда как значение глубины в  $\beta$ - и  $\gamma$ -фазах составляло приблизительно  $1,4 \text{ \AA}$ , т.е. равнялось половине глубины двойного слоя ( $h/2$ ).

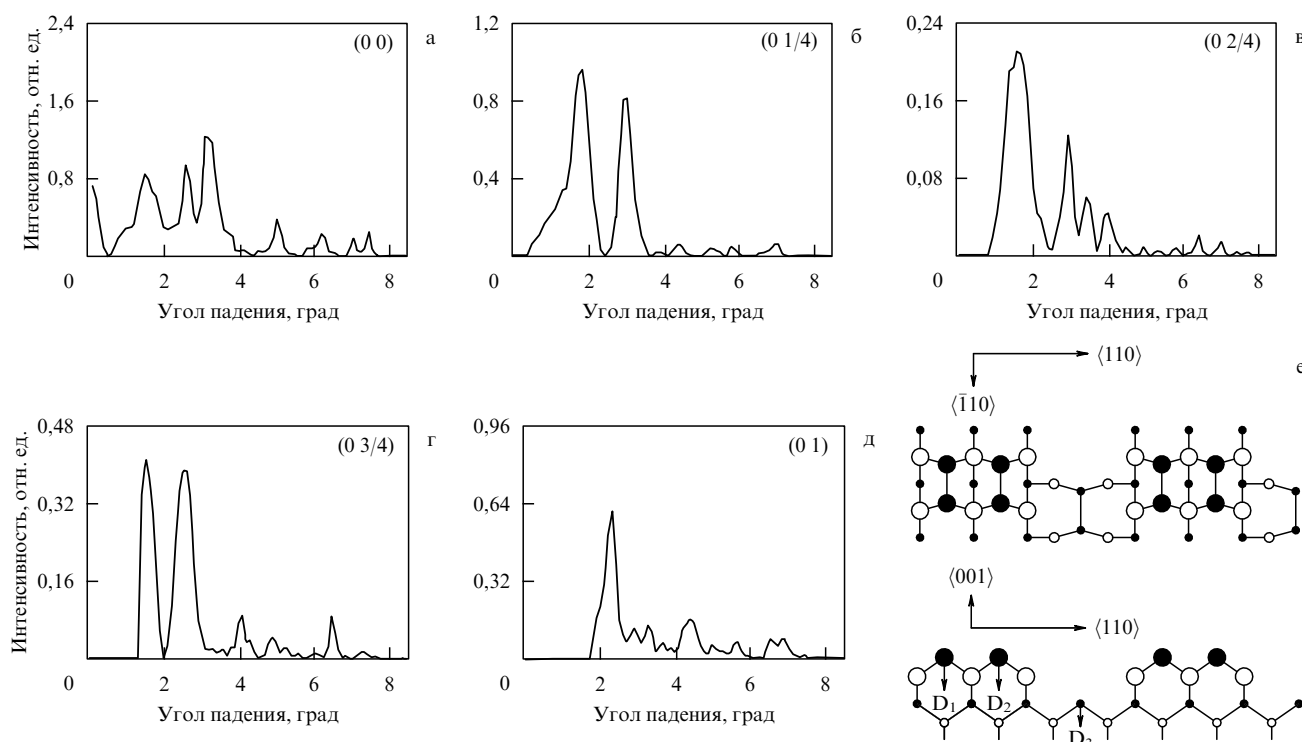
В режиме заполненных состояний ( $V_s < 0$ ), в котором мы и работали, атомы As изображаются как выступы, а оборванные связи атомов Ga не наблюдаются вообще. В моделях фазы  $2 \times 4$ , приведенных на рис. 1, ни одна из структур не могла быть причиной появления профилей сканирования на участках As-димерных вакансий. Таким образом, наблюдение глубины  $h/2$  для фаз  $\beta$  и  $\gamma$  на рис. 7 означает, что в этом случае в области вакансии должна существовать неизвестная подповерхностная структура. Результаты подобного наблюдения обеспечивают необходимой информацией для обсуждения подповерхностных структур.

#### 4.2. Анализ фаз $2 \times 4$ — $\alpha$ , $\beta$ , $\gamma$ на основе динамической теории дифракции быстрых электронов на отражение

Для лучшего понимания процессов образования фаз  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  и учитывая недостаточность кинематических расчетов, мы выполнили расчеты интенсивностей рефлексов ДБЭО для возможных моделей структуры  $2 \times 4$ , используя динамическую теорию, развитую Ичимия [57]. Хотя и было известно, что учет динамических эффектов (т.е.

эффектов многократного рассеяния электронов) очень важен для анализа поверхности GaAs(001) [14], систематического анализа с использованием динамических расчетов ДБЭО ранее не проводилось из-за отсутствия детальной информации о структуре поверхности [43]. При проведении вычислений мы учитывали 19 пучков в нулевой зоне Лауэ в направлении падения  $\langle \bar{1}10 \rangle$ . Поскольку интенсивности рефлексов ДБЭО в нулевой зоне Лауэ нечувствительны к перемещениям, поперечным к направлению падения пучка, релаксации вдоль  $\langle \bar{1}10 \rangle$  направления не учитывались [57].

Основные структурные модели, использовавшиеся для анализа, приведены на рис. 1а–е. Вообще мы полагали, что димеры As сжаты на  $0,2 \text{ \AA}$  в направлении, перпендикулярном к поверхности, чтобы димеризация не сопровождалась изменением длины связи As–Ga, и не должны были перемещаться вдоль направления  $\langle 110 \rangle$ . Относительно других атомов предполагалось, что они не должны были релаксировать из своих равновесных положений в объеме кристалла. Мы также исследовали влияние небольших смещений положений атомов на интенсивности рефлексов ДБЭО. Были рассчитаны кривые качания (т.е. зависимости интенсивности рефлексов ДБЭО от угла наклона образца по отношению к падающему электронному пучку) для пяти отражений зоны Лауэ нулевого порядка,  $(0\ 0)$ ,  $(0\ 1/4)$ ,  $(0\ 1/2)$ ,  $(0\ 3/4)$  и  $(0\ 1)$ , а интенсивности рефлексов были получены путем усреднения в пределах угла падения  $\pm 0,2^\circ$ . Для демонстрации результатов проведенных нами расчетов на рис. 8а–д приведена одна серия кривых качания для двухдимерной As-модели Чади. Параметры, которые мы использовали в динамических расчетах для этой модели, приведены на



**Рис. 8.** Расчетные кривые качания для рефлексов: (а)  $(0\ 0)$ , (б)  $(0\ 1/4)$ , (в)  $(0\ 2/4)$ , (г)  $(0\ 3/4)$  и (д)  $(0\ 1)$ , построенные на основе двухдимерной модели Чади [53]; (е) параметры As-модели (рис. 1б), использованные при проведении динамических ДБЭО расчетов (темными кружочками обозначены атомы As, а светлыми — атомы Ga; приведены вид сверху и сбоку). Сжатие димеров As (два в верхнем слое и один в третьем слое) —  $0,2 \text{ \AA}$ .

рис. 8е. Кривые качания на рис. 8 хорошо согласуются с результатами наших экспериментов, проведенных при 10 кэВ, а также с данными, полученными Ларсеном с сотрудниками [58], хотя и наблюдались некоторые угловые сдвиги, вызванные разницей в энергиях пучков (эксперименты Ларсена проводились при 12,5 кэВ). Важно отметить, что небольшие изменения этих параметров не вызывали значительных изменений относительных величин интенсивностей. Кроме того, здесь ясно продемонстрировано, что для наблюдения рефлекса 2/4 угол падения должен быть больше  $0,8^\circ$  и больше  $1,3^\circ$ , чтобы вообще наблюдать рефлекс 3/4, еще раз опровергая утверждение ФП о возможности использования малых углов падения [15].

Наблюдавшиеся нами картины ДБЭО фаз  $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  были получены при комнатной температуре (рис. 9) и они соответствуют СТМ-изображениям на рис. 5. Результаты ДБЭО исследований были обработаны таким образом, что их можно было сравнивать с теоретическими результатами и представлены в виде гистограмм на рис. 9а–в соответственно для фаз  $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$ . Дробный рефлекс 2/4 оказался слабым для  $\alpha$ -фазы и относительно сильным для  $\beta$ -фазы по сравнению с интенсивностями рефлексов 1/4 и 3/4 и почти отсутствовал для  $\gamma$ -фазы, что совпадает с результатами работы [15].

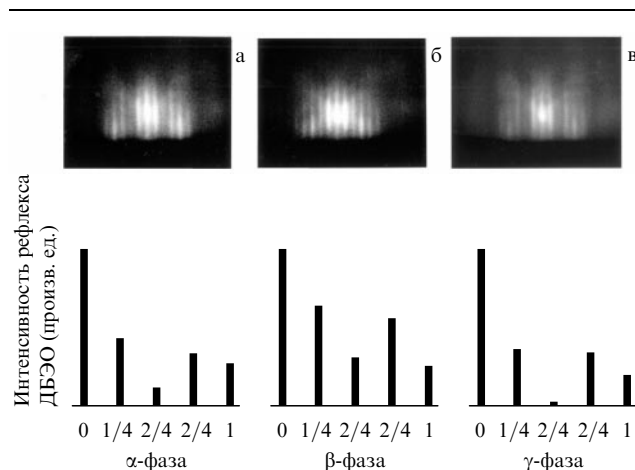


Рис. 9. Экспериментально полученные картины ДБЭО для фаз  $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  и измеренные уширения профилей интенсивности: (а) для  $\alpha$ -фазы; (б) для  $\beta$ -фазы, (в) для  $\gamma$ -фазы.

Обобщенные результаты рассчитанных нами интенсивностей рефлексов приведены на рис. 10. Для двухмерной As-модели Чади (рис. 16) были выполнены расчеты для обоих случаев: без учета релаксации поверхности (рис. 10б) и с учетом предложенной в [48] релаксации поверхности (рис. 10в). Для двухмерной As-модели  $\alpha$ -фазы, предложенной ФП [15], мы выполнили расчеты для следующих моделей: приведенной на рис. 1г модели без учета димеризации или релаксации второго слоя Ga, предложенной Чади [44] (рис. 10г); приведенной на рис. 1д модели с учетом димеризации второго слоя Ga, но без релаксации, предложенной ФП [15] (рис. 10д); приведенной на рис. 1е модели с учетом полной релаксации, предложенной НФ (рис. 10е) [47]. На рисунке 10з приведены также результаты кинематических расчетов для этой модели с учетом второго слоя.

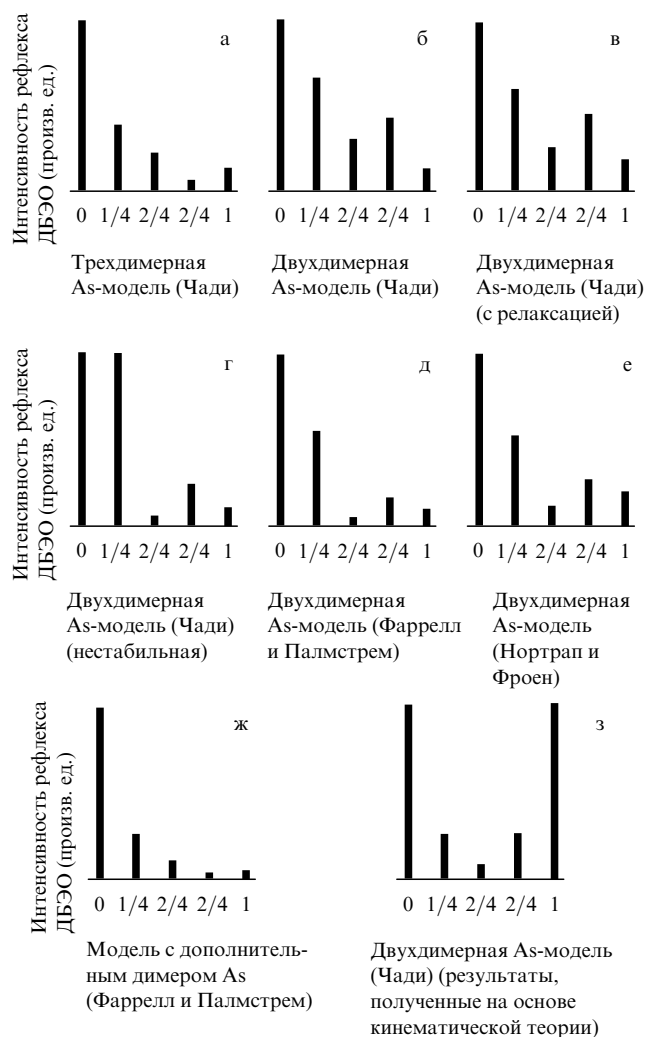


Рис. 10. Профили интенсивности рефлексов ДБЭО, рассчитанные для различных структурных моделей поверхности (см. рис. 1) с использованием динамической теории (а–ж) и кинематического приближения (з).

Трехмерная As-модель Чади (рис. 1а) дает слабую интенсивность для дробного рефлекса 3/4 (рис. 10а) по сравнению с результатами кинематических расчетов [15]. Варьируя сжатие димеров As от  $-0,4$  до  $-0,05$  Å, мы не обнаружили заметных изменений интенсивности. Направленная внутрь релаксация атомов Ga второго слоя, имеющих оборванные связи (до  $0,8$  Å), также дает малый вклад в интенсивности рефлексов 1/4 и 2/4 и не согласуется с результатами экспериментов. Но для нас более важным оказывается то, что трехмерная элементарная ячейка не согласуется с нашими СТМ-изображениями фаз  $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  на рис. 5.

Мак-Кой с сотрудниками анализировали элементарную ячейку структуры  $2 \times 4$ , подгоняя под экспериментально полученные кривые качания кривые, рассчитанные с помощью динамической теории ДБЭО [19]. Чтобы добиться наилучшего соответствия с экспериментальными данными, была использована трехмерная элементарная ячейка Чади (рис. 1а) и поправка на релаксацию атомов первого и второго слоев. В итоге был сделан вывод, что центральный димер As оказывается сжатым на  $0,2$  Å в направлении, перпендикулярном к поверхности

(вследствие чего поверхность "сминается"), а атомы Ga второго слоя могут релаксировать как вдоль плоскости, так и в перпендикулярном к ней направлении [19]. По мнению Мак-Коя, это "смятие" согласуется с СТМ-наблюдениями Галлафера с сотрудниками [40]. Заметим, однако, что промежуток между двумя выступами, который был обнаружен Галлафером на СТМ-изображениях высокого разрешения, может быть легко измерен, и он равен приблизительно  $5 \text{ \AA}$ , хотя сами авторы статьи в явной форме этого не констатировали. В то же время расстояние между выступами, которые образуются в соответствии с предложенным в [19] "смятием", равно  $2a_0 = 8,0 \text{ \AA}$  и не согласуется с результатами СТМ-наблюдений. Проводя динамический анализ Мак-Кой для подгонки рефлексов дробного порядка использовал нормированные кривые, пренебрегая, однако, абсолютными значениями интенсивностей рефлекса. Хотя положения пиков подогнанных им кривых и нормированные интенсивности хорошо согласуются с экспериментально полученными кривыми качания, значения самих интенсивностей рефлексов, полученные с использованием подогнанных положений атомов, оказались подобными результатам, полученным для трехмерной элементарной ячейки Чади без учета релаксации. Главное же различие состояло в том, что изменение координат атомов давало только одну четверть интенсивности рефлекса  $2/4$  по сравнению с тем, что дает модель Чади (рис. 10а). Это только один из примеров той путаницы, которую мы обсуждали во введении и пытаемся разрешить сейчас! Модель с дополнительным димером на рис. 1ж [15] дает лишь слабую интенсивность рефлекса  $3/4$ , как это было и в случае трехмерной модели (рис. 1а), и не согласуется ни с какими экспериментальными результатами.

Двухмерная As-модель, предложенная Чади (рис. 1б), дает почти одинаковые интенсивности для рефлексов дробного порядка  $1/4$ ,  $2/4$  и  $3/4$  (рис. 10б) и хорошо согласуется с  $\beta$ -фазой (рис. 9б). Варьирование сжатия димеров As от  $-0,4 \text{ \AA}$  до  $-0,05 \text{ \AA}$  дает в результате приблизительно 20%-ное изменение интенсивности нулевого рефлекса, а наилучшее соответствие с экспериментом получается при величине сжатия приблизительно  $-0,2 \text{ \AA}$ . Кинематические расчеты, проведенные для этой модели и учитывающие влияние только первого слоя, привели к тем же результатам, что и расчеты для двухмерной As-модели ФП [15], в частности, дали нулевую интенсивность рефлекса  $2/4$ . Однако, поскольку во втором слое находится только три из четырех пар атомов Ga, то полученные в результате дифракции на первой плоскости пучки будут дифрагировать снова на второй плоскости, и между отражениями от первого и второго слоев возникнет интерференционный эффект, значит, интенсивность изображений стержней обратной решетки должна осциллировать по синусоидальному закону в зависимости от координаты обратной решетки, нормальной к поверхности ( $k_z$ ) [59]. Если мы рассмотрим менее упорядоченную поверхность, то интенсивность изображений стержней обратной решетки должна быть усреднена, и мы получим интенсивности рефлексов, аналогичные показанным на рис. 10з. Усредненные значения интенсивностей рефлексов  $(0\ 0)$ ,  $(0\ 1/4)$ ,  $(0\ 1/2)$ ,  $(0\ 3/4)$  и  $(0\ 1)$ , полученные с помощью кинематических расчетов для двухмерной As-модели Чади, равны соответственно 13, 3, 1, 3 и 13

(рис. 10з) и могут рассматриваться как сумма интенсивностей рефлексов, рассчитанных в кинематическом приближении для двухмерной элементарной ячейки  $(4, 2, 0, 2)$  и  $(4)$  и трехмерной элементарной ячейки  $(9, 1, 1, 1)$  и  $(9)$ . В результате мы получаем ненулевую интенсивность рефлекса  $2/4$  для двухмерной элементарной ячейки Чади даже в кинематическом приближении. Динамический эффект еще больше усиливает интенсивность рефлекса  $2/4$ , приводя в результате к хорошему согласию с данными по  $\beta$ -фазе (рис. 9б).

НФ недавно распространили свои расчеты, основанные на использовании первых принципов, на двухмерную As-модель Чади [48]. Воспользовавшись значениями устоявшихся координат поверхностных атомов, предоставленных Норттрапом, мы также провели вычисления интенсивностей рефлексов, результаты которых приведены на рис. 10в. Мы не наблюдали большой разницы с исходной моделью (рис. 10б) и установили, что данный метод нечувствителен к точным координатам отдельных атомов, следовательно, все определяется общим расположением атомов в каждом атомном слое. Полученные нами расчетные кривые качания показали хорошее согласие с экспериментальными кривыми Мак-Коя [19] в положениях пиков кривых, а также абсолютных значений интенсивностей рефлексов.

Различные двухмерные As-модели с четырьмя парами атомов Ga во втором слое, предложенные Чади (рис. 10г) [44], ФП (рис. 10д) [15] и НФ (рис. 10е) [47], дают дробный рефлекс  $2/4$  слабой интенсивности, что в целом согласуется с интенсивностью рефлекса  $2/4$   $\alpha$ -фазы (рис. 9а). Вместе с тем интенсивность рефлекса  $1/4$  оказалась весьма чувствительной к димеризации атомов Ga во втором слое (рис. 10г, д), и при изменении расстояния между атомами Ga от  $4,0 \text{ \AA}$  (рис. 10г) [44] до  $3,9 \text{ \AA}$  она изменялась от 1,0 до 0,25 относительно интенсивности нулевого рефлекса. Поскольку интенсивности рефлексов не так чувствительны к релаксации (за исключением димеризации) атомов Ga второго слоя, то некорректно было обсуждать разницу между элементарными ячейками в моделях ФП (рис. 10д) [15] и НФ (рис. 10е) [47], основываясь только на анализе интенсивностей рефлексов; такое обсуждение должно включать в себя детальный анализ кривых качания [19, 54, 60]. Проведение такого анализа позволило в итоге отдать предпочтение модели НФ, которая для фаз  $\alpha$  и  $\beta$  хорошо согласуется с результатами измерений глубины профиля, приведенными на рис. 7.

В случае  $\gamma$ -фазы, где отдельные домены малы и обычно разделены промежутками размером  $d = 7a_0$ , проведение кинематических расчетов оправдано благодаря ослаблению динамических эффектов, и ДБЭО картины должны показать уменьшение интенсивности дробного рефлекса  $2/4$  (рис. 10з), что не противоречит результатам экспериментов (рис. 9в).

#### 4.3. Исследование поверхностных фазовых переходов между решетками $c(4 \times 4)$ и $2 \times 4-\gamma$

Для того чтобы проанализировать детальную структуру открытых областей в фазе  $2 \times 4-\gamma$ , были получены фазы  $c(4 \times 4)$  и  $2 \times 4-\gamma$ , а также смешанные фазы с использованием методики МУЭ. СТМ-изображение, приведенное на рис. 4а, является типичным для фазы  $c(4 \times 4)$ , выраженной с помощью МУЭ. Элементарная ячейка имеет периоды  $4a_0$  и  $2a_0$  в направлениях  $\langle 110 \rangle$  и  $\langle 1\bar{1}0 \rangle$  соответ-

ственно, образуя симметрию  $c(4 \times 4)$ . Структурная модель фазы  $c(4 \times 4)$ , предложенная Бигельсеном [36] и принятая большинством исследователей, показана на рис. 11а. Эта модель состоит из трех димеров As, расположенных на атомах As в элементарной ячейке  $c(4 \times 4)$ , образуя двойной слой As. Для сопоставления результатов наших СТМ-экспериментов с этой моделью были построены зависимости глубины профиля фазы  $c(4 \times 4)$  от расстояния вдоль направлений  $\langle 110 \rangle$  (рис. 11б) и  $\langle 110 \rangle$  (рис. 11в). Ниже (рис. 11г) для сравнения приведена аналогичная зависимость глубины профиля фазы  $(2 \times 4) - \gamma(\beta)$ . Как легко видеть, вдоль направления  $\langle 110 \rangle$  наблюдается два (а не три!) пика, разделенных промежутком  $2a_0$ , что согласуется с моделью Бигельсена [36], в которой предполагается повышенная электронная плотность состояний около угловых димеров As. Периодичность выступов по глубине профиля сканирования вдоль направления  $\langle 110 \rangle$  (рис. 11в, г) также согласуется с этой моделью. Таким образом, результаты СТМ-анализа в целом подтверждают структурную модель Бигельсена, хотя и следовало бы отметить, что упорядочение фазы  $c(4 \times 4)$  не вполне идеально [43], а число димеров As в расчете на одну элементарную ячейку может быть два или даже один (аналогично отсутствующим димерным дефектам в случае фаз  $2 \times 4$ ). Помимо этого, мы наблюдали димеры As, смещенные на расстояние  $a_0$  в направлении  $\langle 110 \rangle$ , подобно повторяющимся изломам ступеней в фазе  $2 \times 4$ , а также локальные участки со структурой  $p(2 \times 2)$  и с двумя димерами As в элементарной ячейке, о которых впервые сообщил Бигельсен [36]. Варьируя число димеров As в элементарной ячейке, с помощью этой модели можно легко объяснить и результаты экспериментов по дифракции рентгеновских лучей [29].

Если мы сравним ширину изображения димеров As вдоль направления димеризации между фазами  $c(4 \times 4)$

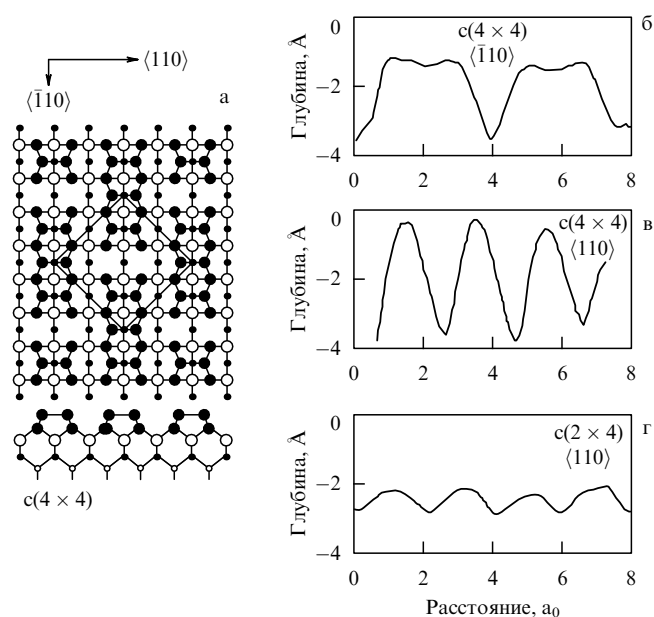
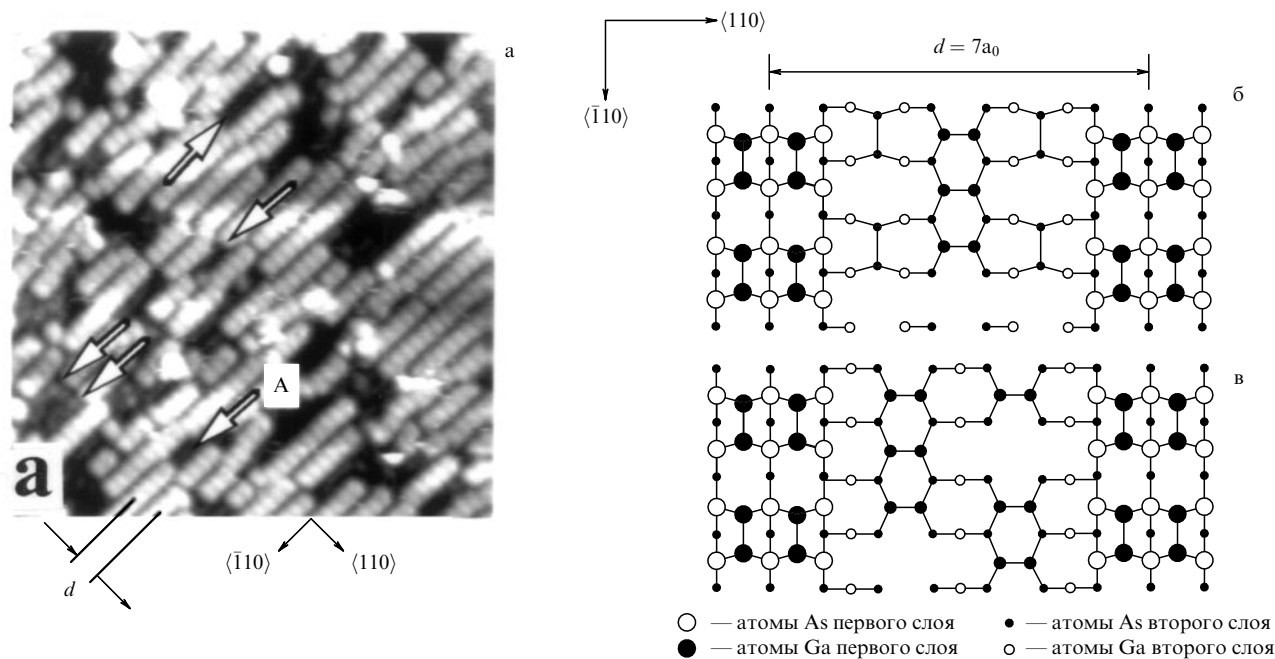


Рис. 11. Модель Бигельсена фазы  $c(4 \times 4)$  [36] (вид сверху и вид сбоку); темными кружочками обозначены атомы As, светлыми — атомы Ga (а). Графики глубины профиля фазы  $c(4 \times 4)$  в направлении  $\langle 110 \rangle$  (б),  $\langle 110 \rangle$  (в) и фазы  $2 \times 4$  в направлении  $\langle 110 \rangle$  (г).

(рис. 11в) и  $2 \times 4$  (рис. 11г), то увидим, что димеры As в фазе  $c(4 \times 4)$  изображаются уже, чем As-димеры в фазе  $2 \times 4$ . В результате это дает заметную разницу в СТМ-изображениях димеров As в фазе  $4 \times 4$  и димеров As в фазе  $2 \times 4$ : первые изображаются как небольшие круглые выступы, а вторые — как обычные выступы продолговатой формы. Мы полагаем, что причиной такой разницы в пространственном распределении электронных состояний оборванных связей является различие в химическом окружении димеров As в фазе  $c(4 \times 4)$  и в фазе  $2 \times 4$ , что, в итоге, и приводит к существенно различным СТМ-изображениям. Отметим также, что димеры As, находящиеся в фазе  $c(4 \times 4)$ , связаны с атомами As, поэтому переноса заряда из второго слоя к первому не предполагается, и димеры As на поверхности остаются нейтральными. В противоположность этому, димеры As, находящиеся в фазе  $2 \times 4$ , связаны с атомами Ga, и в этом случае предполагается перенос заряда из второго слоя, приводящий к заряджению димеров As. Разница в электронной плотности состояний исследовалась Ларсеном с сотрудниками в экспериментах по фотоэлектронной спектроскопии [26], в которых наблюдался больший по амплитуде пик поверхностных состояний для фазы  $2 \times 4$ , но расположенный ниже по энергетической шкале, чем для фазы  $c(4 \times 4)$ , что согласуется с разницей в размерах СТМ-изображений димеров As в фазах  $\gamma$ ,  $\beta$  и  $c(4 \times 4)$ .

После того как удалось объяснить различие между СТМ-изображениями димеров As, находящихся в элементарной ячейке  $c(4 \times 4)$  или  $2 \times 4$ , стал понятен и механизм структурного перехода от фазы  $c(4 \times 4)$  к фазе  $2 \times 4 - \gamma$  в условиях меньшего содержания As, причем даже в фазе  $c(4 \times 4)$  можно было обнаружить зарождение островков с элементарной ячейкой  $2 \times 4$  (рис. 4а). В тех случаях, когда рост островков происходил в условиях несколько меньшего содержания As, наблюдалось большее число участков со структурой  $2 \times 4$  (рис. 4б–г). Ряд экспериментов по МУЭ, проведенных при различных значениях отношения концентраций  $[As_4]/[Ga]$  в потоке, подтвердил, что участки со структурой  $2 \times 4$  становятся доминирующими и в конце концов отождествляются с  $\gamma$ -фазой, выращенной с помощью обычной МЛЭ при отношении концентраций  $[As_4]/[Ga]$  в потоке 12:1 (рис. 5в). Как видно из рис. 4, в промежутках между зародившимися островками фазы  $2 \times 4$  все еще можно наблюдать остающиеся участки с фазой  $c(4 \times 4)$  (см. рис. 4). Эти наблюдения, естественно, привели к заключению, что фаза  $2 \times 4 - \gamma$  образуется путем замещения элементарных ячеек  $c(4 \times 4)$  элементарными ячейками  $2 \times 4$  в условиях более низкого содержания As. Действительно, при более скрупулезном исследовании открытых участков в  $\gamma$ -фазе (рис. 5в, 7 и 12а) часто можно было обнаружить подповерхностные структуры на глубине приблизительно равной  $1,4 \text{ \AA}$  (т.е.  $h/2$  — половине высоты двойного слоя). На рисунке 5в также хорошо видно, что наименее упорядоченной оказывается именно  $\gamma$ -фаза, а присутствие беспорядочно распределенных открытых участков приводит в результате к образованию небольших доменов размером приблизительно  $60 \text{ \AA}$  и  $100 \text{ \AA}$ . Тщательное исследование структуры некоторых открытых участков  $\gamma$ -фазы для промежутков  $d = 5a_0$ ,  $7a_0$  и  $8a_0$  позволило установить, что на открытых участках в  $\gamma$ -фазе находятся оставшиеся димеры As, расположенные на третьем слое атомов As, подобно двойному слою атомов As в



**Рис. 12.** СТМ-изображение участка поверхности  $260 \text{ \AA} \times 260 \text{ \AA}$  с  $\gamma$ -фазой,  $V_s = -3,0 \text{ В}$ ,  $I_t = 2,0 \times 10^{-11} \text{ А}$  (а). Структурные модели открытого участка в  $\gamma$ -фазе с промежутком  $d = 7a_0$  (б) и (в).

фазе  $c(4 \times 4)$ . На рисунке 12а в открытых областях можно также наблюдать тусклые линии, бегущие вдоль направления  $\langle \bar{1}10 \rangle$  (показаны стрелками), которые лежат на  $1,4 \text{ \AA}$  ( $h/2$ ) ниже верхнего слоя димеров As (например, линия А). Исследование профилей СТМ-изображений фаз  $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  (рис. 5, 11) показало, что на исследуемой поверхности канавки с  $d \geq 5a_0$  имеют такую же глубину  $h$ , какая наблюдалась для  $\alpha$ -фазы, и глубину  $h/2$  для фаз  $\beta$  и  $\gamma$ , допуская существование структурных различий во втором и/или в третьем слоях. Анализ СТМ данных (рис. 5в и 12а) позволил нам построить структурные модели открытого участка  $\gamma$ -фазы с промежутком  $d = 7a_0$  (рис. 12б, в). Преобладание отдельных структур зависело от условий их приготовления: например, мы обнаружили, что структура на рис. 12б превалирует более чем в 90 % случаях для  $d = 7a_0$ , а узкие открытые области с промежутком  $d = 5a_0$  занимают всего несколько процентов.

## 5. Структурная модель двумерных фаз $2 \times 4$ - $\alpha$ , $\beta$ и $\gamma$

Основываясь на результатах наших СТМ исследований и динамических расчетов интенсивностей рефлексов ДБЭО, мы предлагаем следующую объединенную структурную модель для фаз  $2 \times 4$ - $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  (рис. 13):  $\alpha$ -фаза хорошо описывается двухмерной As-моделью, предложенной ФП [15], с учетом релаксации поверхности, введенной НФ [47];  $\beta$ -фаза — двухмерной As-моделью, предложенной Чади [44], и  $\gamma$ -фазу можно рассматривать просто как смесь  $\beta$ -фазы и фазы  $c(4 \times 4)$ .

Благодаря значительному массопереносу атомов As к поверхности, а также по самой поверхности в процессе МЛЭ, ее рост происходил в квазистационарных условиях, и удаление атомов As, по существу, было эквивалентно добавлению атомов Ga. Для  $\gamma$ -фазы открытый

участок с локальным двойным слоем As содержит As-покрытие, не превышающее  $1,75 \text{ МС}$ , такое же, как и фаза  $c(4 \times 4)$ , а область со структурой  $2 \times 4$  —  $0,75 \text{ МС}$  (т.е. один димер As на элементарную ячейку в третьем слое). Таким образом,  $\gamma$ -фаза, а также смешанная фаза  $c(4 \times 4)/2 \times 4$ - $\gamma$ , характеризуются степенью As-покрытия, находящейся в пределах  $0,75$ – $1,75 \text{ МС}$ , однако после выбора конкретных условий приготовления образца, стехиометрия поверхности и отношение доменов фаз  $c(4 \times 4)$  и  $2 \times 4$ - $\gamma$  становятся строго определенными. Степень As-покрытия поверхности для фаз  $2 \times 4$ - $\alpha$ ;  $\beta$ ;  $\gamma$  и  $c(4 \times 4)$  соответственно равна  $0,5$ ;  $0,75$ ;  $1,0$  и  $1,75 \text{ МС}$ , что очень хорошо согласуется с предыдущими результатами.

В заключение отметим, что предложенная выше структурная модель для  $c(4 \times 4)$  и  $2 \times 4$ - $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  фаз может успешно объяснить и результаты недавних экспериментов по исследованию рассеяния ионов средней энергии, выполненных Фалта с сотрудниками [34], полагая, что атомы Ga, подвергавшиеся воздействию ионного пучка, повышают степень упорядочения поверхности последовательно от фазы  $c(4 \times 4)$  к фазам  $\gamma$ ,  $\beta$  и  $\alpha$ . Однако ионы, испытавшие обратное рассеяние от атомов подложки при выходе из кристалла, могут затеняться поверхностными атомами (так называемое явление блокирования). Упомянутое в разделе 2 расхождение результатов Фалта с моделями верхнего слоя As касается абсолютного значения отношения интенсивностей As/Ga для фазы  $2 \times 4$ - $\alpha$  [34]. Однако в двухмерной As-модели  $\alpha$ -фазы все димеры As первого слоя, а также атомы Ga второго слоя и атомы As третьего слоя оказываются сдвинутыми из своих первоначальных положений; это обстоятельство должно уменьшить блокирование интенсивности рассеяния со стороны шестого слоя атомов Ga, в особенности, вне теневого конуса.

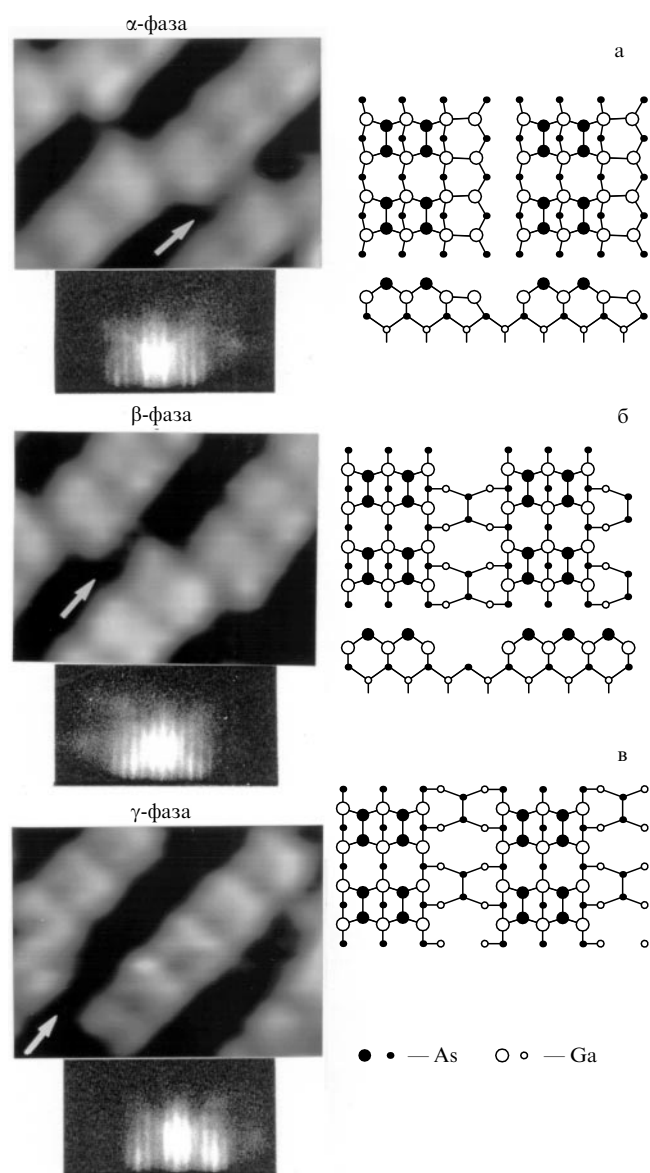


Рис. 13. СТМ-изображения и картины ДБЭО поверхности GaAs(001) с соответствующими структурными моделями для: (а)  $\alpha$ -фазы; (б)  $\beta$ -фазы и (в)  $\gamma$ -фазы.

## 6. Заключение

Физика многокомпонентных поверхностных фаз в настоящее время переживает период бурного развития, связанный с прогрессом в технологии эпитаксиального роста микро- и нанoeлектронных структур [4]. Заметно возросло и число теоретических работ, посвященных моделям поверхностных структур, возникающих при МЛЭ [15–19, 46–48], наиболее эффективным методом диагностики которых, несомненно, является СТМ.

Разработанная нами оригинальная установка МЛЭ–СТМ позволила провести детальные исследования атомных структур на поверхности GaAs(001)– $2 \times 4$ , полученной с помощью МЛЭ, и показать, что фазы  $2 \times 4$ – $\alpha$ ,  $\beta$  и  $\gamma$  имеют во внешнем поверхностном слое одинаковую элементарную ячейку, состоящую из двух димеров As и двух As-димерных вакансий. На основе результатов СТМ и ДБЭО наблюдений, а также динамических расчетов рефлексов ДБЭО, предложена унифицирован-

ная структурная модель:  $\alpha$ -фаза описывается двухдимерной As-моделью, предложенной Фарреллом и Палмстрёмом [15], в которой учитывается релаксация поверхности [47], а покрытие составляет 0,5 MC;  $\beta$ -фаза описывается двухдимерной As-моделью, предложенной Чади [44], и покрытие составляет 0,75 MC As;  $\gamma$ -фаза представляет собой смесь фаз  $\beta$  и  $c(4 \times 4)$  с As-покрытием, изменяющимся между 1,75 MC и 0,75 MC и зависящим от условий роста.

Вместе с тем обширная информация по атомным структурам, выращенным с помощью МЛЭ, накопленная за последние годы, только сейчас начинает находить достоверные объяснения. Как это продемонстрировано в настоящем обзоре, применение даже столь мощного метода, как СТМ, не всегда обеспечивает однозначную интерпретацию результатов, поэтому наиболее перспективным представляется использование СТМ *in situ* лишь в сочетании с другими методами исследования структуры поверхности твердых тел — ДБЭО [15–18], ДМЭ [21], различных видов электронной спектроскопии [25–28, 31–33], рассеяния ионов средних энергий [34] и др., а также привлечение новых теоретических подходов для описания сложных явлений, сопровождающих процесс эпитаксиального роста и возникновение различных поверхностных атомных структур.

**Благодарности.** Авторы признательны А. Ичимия (A. Ichimiya, университет Нагоя, Япония) за помощь в проведении динамических расчетов ДБЭО, Дж.Е. Нортрапу (Dr. J.E. Northrup, Исследовательский центр компании Ксерокс, Пало Альто, Калифорния, США) за предоставление результатов теоретических расчетов и ценные замечания, а также Ж.-М. Цоу (J.-M. Zhou, Институт физики АН КНР, Пекин, Китай) за помощь в работе и полезные обсуждения.

Работа выполнялась при частичной поддержке Федеральной программы "Поверхностные атомные структуры" ГКНТ РФ (Russian Federal Program "Surface Atomic Structures"), проект № 96-2.27, и Международной соросовской программы образования в области точных наук (ISSEP), грант № 926P.

## Список литературы

1. Madhukar A, Ghaisas S V *CRC Crit. Rev. Solid State Mater. Sci.* **14** 1 (1988)
2. Herman M A, Sitter H *Molecular Beam Epitaxy: Fundamental and Current Status* (New York, Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 1996)
3. Cho A Y (Ed.) *Molecular Beam Epitaxy* (New York: AIP Press, 1994)
4. Бахтизин Р З и др. *ЖЭТФ* **110** (4) (1997)
5. Sakaki H, Node H (Eds) *Nanostructures and Quantum Effects* (Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 1994)
6. Cho A Y *J. Appl. Phys.* **42** 2074 (1971); Arthur J R *Surf. Sci.* **43** 449 (1974)
7. Cho A Y, Arthur J R *Prog. Solid State Chem.* **10** 157 (1975)
8. Cho A Y *J. Appl. Phys.* **47** 2841 (1976)
9. Neave J H, Joyce B A J. *Cryst. Growth* **44** 387 (1978)
10. Larsen P K et al. *Phys. Rev. B* **27** 4966 (1983)
11. Joyce B A et al. *Phys. Rev. B* **29** 814 (1984)
12. Farrell H H, Harbison J P, Peterson L D *J. Vac. Sci. Technol. B* **5** 1482 (1987)
13. Knibb M G, Maksym P A *Surf. Sci.* **195** 475 (1988)
14. Larsen P K, Chadi D J *Phys. Rev. B* **37** 8282 (1988)
15. Farrell H H, Palmström C J J. *Vac. Sci. Technol. B* **8** 903 (1990)
16. Däweritz L, Hey R *Surf. Sci.* **236** 15 (1990)

17. Yamaguchi H, Horikoshi Y *Phys. Rev. B* **44** 5897 (1991)
18. Deparis C, Massies J J. *Cryst. Growth* **108** 157 (1991)
19. McCoy M et al. *Phys. Rev. B* **48** 4721 (1993); *Surf. Sci.* **261** 29 (1992)
20. Nörenberg H, Koguchi N *Surf. Sci.* **296** 199 (1993)
21. Van Bommel A J, Chrombeen J E, van Dirschof T G *Surf. Sci.* **72** 95 (1978)
22. Drathen P, Ranke W, Jacobi K *Surf. Sci.* **77** L162 (1978); Ranke W, Jacobi K *Prog. Surf. Sci.* **10** 1 (1981)
23. Svensson S P, Nilsson P O, Anderson T G *Phys. Rev. B* **31** 5772 (1985)
24. Massies J et al. *Surf. Sci.* **99** 121 (1980)
25. Duszak R et al. *J. Vac. Sci. Technol. B* **10** 1891 (1992)
26. Larsen P K, Neave J H, Joyce B A J. *Phys. C* **14** 167 (1981)
27. Larsen P K et al. *Phys. Rev. B* **26** 3222 (1982)
28. Chiang T C et al. *Phys. Rev. B* **27** 4770 (1983)
29. Sauvage-Simkin M et al. *Phys. Rev. Lett.* **62** 563 (1989)
30. Chambers S A *Surf. Sci.* **261** 48 (1992)
31. Kamiya I et al. *Phys. Rev. Lett.* **68** 627 (1992); *Phys. Rev. B* **46** 15894 (1992)
32. Frankel D J et al. *J. Vac. Sci. Technol. B* **5** 1113 (1987)
33. Kanisawa K et al. *J. Cryst. Growth* **115** 348 (1991)
34. Falta J et al. *Phys. Rev. Lett.* **69** 3068 (1992); "Comments and Reply" *Phys. Rev. Lett.* **70** 3171 (1993)
35. Pashley M D et al. *Phys. Rev. Lett.* **60** 2176 (1988)
36. Biegelsen D K et al. *Phys. Rev. B* **41** 5701 (1990); *Proc. SPIE* **1186** 136 (1990)
37. Pashley M D, Haberern K W *Phys. Rev. Lett.* **67** 2697 (1991); Pashley M D et al. *Phys. Rev. B* **48** 4612 (1993)
38. Heller E J, Zhang Z Y, Lagally M G *Phys. Rev. Lett.* **71** 743 (1993); Heller E J, Lagally M G *Appl. Phys. Lett.* **60** 2675 (1992)
39. Wassermeier M et al. *Surf. Sci. Lett.* **278** L147 (1992); Bressler-Hill V et al. *J. Vac. Sci. Technol. B* **10** 1881 (1992)
40. Gallagher M C, Prince R H, Willis R F *Surf. Sci.* **275** 31 (1992)
41. Zhou J M et al. *Appl. Phys. Lett.* **64** 583 (1994)
42. Xue Q-K et al. *J. Appl. Phys.* **75** 5201 (1994)
43. Hashizume T et al. *Phys. Rev. Lett.* **73** 2208 (1994)
44. Chadi D J J. *Vac. Sci. Technol. A* **5** 834 (1987)
45. Qian G-X, Martin R M, Chadi D J *Phys. Rev. B* **38** 7649 (1988)
46. Ohno T *Phys. Rev. Lett.* **70** 631 (1993)
47. Northrup J E, Froyen S *Phys. Rev. Lett.* **71** 2276 (1993)
48. Northrup J E, Froyen S *Phys. Rev. B* **50** 2015 (1994)
49. Harrison W A J. *Vac. Sci. Technol.* **16** 1492 (1979)
50. Pashley M D *Phys. Rev. B* **40** 10481 (1989)
51. Horikoshi Y, Kawashima M, Yamaguchi H *Jpn. J. Appl. Phys.* **25** L868 (1986)
52. Sakurai T et al. *Prog. Surf. Sci.* **33** 3 (1990)
53. Miwa Sh et al. *Jpn. J. Appl. Phys.* **32** 1508 (1993)
54. Бахтизин Р З и др. *ЖЭТФ* **108** 997 (1995); *ЖТФ* **64** 113 (1994)
55. Ichimiya A, Kambe K, Lehmppuhl G J. *Phys. Soc. Jpn.* **49** 684 (1980); Horio Y, Ichimiya A *Surf. Sci.* **219** 128 (1989)
56. Feenstra R M, Stroscio J A, Tersoff J *Phys. Rev. Lett.* **58** 1192 (1987)
57. Ichimiya A *Jpn. J. Appl. Phys.* **22** 176 (1983); **24** 1365 (1985); *Surf. Sci.* **235** 75 (1990)
58. Larsen P K et al. *Surf. Sci.* **169** 176 (1986)
59. Lagally M G, in *Methods of Experimental Physics* (New York: Academic Press, 1985) p. 237; Henzler M *Surf. Sci.* **11/12** 450 (1982)
60. Karpov I et al. *J. Vac. Sci. Technol. B* **13** (5) 2041 (1995)

### Atomic structures on the GaAs(001) surface grown by molecular beam epitaxy

**R.Z. Bakhtizin**

Department of Physical Electronics, Bashkir State University,  
450074 Ufa, Russia

Tel./Fax (7-3472) 503 085

E-mail: raouf@online.ru

**T. Sakurai, Q.-K. Xue**

Institute for Materials Research (IMR), Tohoku University,  
Sendai 980-77, Japan

Tel. + 81-22-215-2021. Fax + 81-22-215-2020

E-mail: sakurai@apfim.imr.tohoku.ac.jp

**T. Hashizume**

Hitachi Advanced Research Laboratory,  
Hitachi, Ltd., Hatoyama, Saitama 350-03, JAPAN

Tel. + 81-492-96-8111. Fax + 81-492-96-6006

E-mail: tomi@harl.hitachi.co.jp

A unique apparatus for the *in-situ* atomic-resolution study of solid state structures grown by molecular beam epitaxy (MBE) is developed, in which a scanning tunneling microscope (STM) is combined with an MBE chamber within a common vacuum system. The utility of the apparatus is demonstrated by examining atomic structures on the molecular-beam-epitaxial GaAs(001) surface over a wide range of [As]/[Ga] ratios. By varying the As surface coverage, the  $2 \times 4$ - $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  and  $c(4 \times 4)$  phases are examined in detail. High-resolution STM images indicate that  $2 \times 4$ - $\alpha$ ,  $\beta$  and  $\gamma$  phases in the outermost surface layer have essentially the same unit cell consisting of two As dimers and two As dimer vacancies. Using the STM images, reflection high-energy electron diffraction (RHEED) patterns and dynamical RHEED calculations, the existing structural models for the  $2 \times 4$  phases are analysed and a new model of the As-rich GaAs(001) surface is proposed, found to be consistent with most of the previous observations.

PACS numbers: 61.14.Hg, 61.16.Di, 68.55.Bd

Bibliography — 60 references

Received 17 March 1997, revised 10 June 1997