Письма в ЖЭТФ, том 86, вып. 7, с. 553 – 557 © 2007 г. 10 октября

# Роль латерального взаимодействия в гомоэпитаксии GaAs на поверхности (001)-$\beta(2 \times 4)$

*Ю. Г. Галицын, Д. В. Дмитриев, В. Г. Мансуров, С. П. Мощенко*[1], *А. И. Торопов*

*Институт физики полупроводников Сибирского отд. РАН, 630090 Новосибирск, Россия*

Поступила в редакцию 22 августа 2007 г.

Гомоэпитаксия GaAs в молекулярно-лучевой эпитаксии на поверхности (001)-$\beta(2 \times 4)$ рассматривается как двумерный фазовый переход первого рода от решеточного газа адсорбированных ростовых компонентов к двумерной кристаллической фазе. В рамках теории среднего поля фазового перехода определены параметры латерального взаимодействия между заполненными ячейками решеточного газа. Выявлены причины завершения роста полного монослоя (самоупорядочения), прежде чем начнется рост нового монослоя. Осцилляционные эксперименты подтверждают выводы предлагаемой теории фазового перехода в гомоэпитаксии.

PACS: 64.60.–i, 68.35.Bs

Молекулярно-лучевая эпитаксия (МЛЭ) является наиболее часто применяемым способом получения различных квантовых структур на полупроводниках $A^3B^5$. При этом совершенные и высококачественные структуры получаются только при условии послойного роста кристаллов, то есть тогда, когда эпитаксиальный рост происходит через зарождение на поверхности 2D островков новой фазы и их последующий рост до образования полного монослоя растущего кристалла. В методе дифракции быстрых электронов на отражение (ДБЭО) от растущей поверхности послойный рост регистрируется по осцилляциям интенсивности дифракционных пучков. Длительность каждой осцилляции точно соответствует времени роста одного монослоя кристалла [1].

Гомоэпитаксиальный рост арсенида галлия на поверхности (001)-$\beta(2 \times 4)$ из потоков галлия и $As_4$ или $As_2$ является классической модельной системой в анализе механизмов двумерного роста кристаллов. Несмотря на длительную, более четверти века, историю таких исследований, к настоящему времени имеется много нерешенных проблем (см. обзоры [2, 3]). Процессы образования монослойных 2D островков новой растущей фазы арсенида галлия принято моделировать кинетическим методом Монте-Карло(КМС) [4 – 11]. В этом численном методе оценок статистических сумм случайных конфигураций, возникающих на поверхности, требуется знание значительного количества физических параметров: кинетических барьеров для диффузии атомов мышьяка и галлия для разных направлений; энергий связи адсорбированных атомов, энергий взаимодействия между атомами и т.д. Так, в работе [6] используется 30 параметров для различных последовательных процессов, приводящих к 2D зародышу. Фактически в методе КМС выбор численных значений параметров весьма произволен. Так, в [5 – 7] для энергии активации диффузии атомов галлия использовалась величина 0.7 эВ, в работе [8] – 1.4 эВ, а в работе [10] – 1.0 эВ. Также произволен выбор численных значений других параметров [2]. Большое разнообразие процессов, происходящих на поверхности (001) арсенида галлия при росте, является следствием сложности поверхностной реконструкции $\beta(2 \times 4)$. Каждая элементарная ячейка $(2 \times 4)$ этой реконструкции построена из двух димеров мышьяка и двух димерных вакансиий верхнего слоя, то есть верхний слой имеет степень заполнения мышьяком 0.5. Второй слой из атомов галлия – 0.75, то есть отсутствуют два атома галлия. Третий слой из атомов мышьяка заполнен полностью, но на обнаженной его части, являющейся дном канавки, атомы мышьяка образуют димер. Данная реконструкция обладает самой низкой поверхностной энергией в области температур подложки 540–600 °C и давлений мышьяка $10^{-5}$–$10^{-6}$ торр.

Однако следует отметить более существенный недостаток использованного в [4 – 11] подхода. Авторы данных работ ограничиваются, как правило, малыми степенями заполнения исходной поверхности новым монослоем $\Theta < 0.1$. В процессе эпитаксии всегда происходит заполнение монослоя, прежде чем происходит зародышеобразование в следующем, поэтому неясно, приведет ли этот теоретический подход к полному заполнению поверхности монослоем новой фазы прежде, чем начнется заполнение следующего слоя.

[1] e-mail: sergem@isp.nsc.ru

Дело в том, что гомоэпитаксия арсенида галлия, происходящая через зарождение на поверхности и рост 2D островков новой фазы фактически является 2D фазовым переходом первого рода от газовой фазы с низкой плотностью (решеточный газ) к конденсированной фазе с высокой плотностью (2D кристаллический слой). В фазовом переходе скорость зарождения новой фазы (процесс спонтанный, самопроизвольный) определяется пересыщением и состоянием среды, в которой происходит фазовый переход. В нашем случае – морфологическим состоянием исходной поверхности. Рост новой фазы определяется другими кинетическими параметрами. В жесткой детерминированной схеме последовательных процессов, приводящих к образованию 2D зародыша новой фазы, примененной в работах [2 – 11], во-первых, процессы зародышеобразования и процессы роста не разделены и, во-вторых, моделируются процессы зародышеобразования на идеальной поверхности, что не соответствует реальности, и поэтому совсем не удивительно, что у ряда авторов получился странный результат, противоречащий классической теории зародышеобразования. А именно, в [6, 7] расчетная плотность 2D зародышей оказалась немонотонной функцией температуры. При $T = 800$ К возникает минимум плотности 2D зародышей. Это противоречит стандартной теории зародышеобразования при фазовых переходах первого рода.

Все же отметим, что эти работы являются крупным вкладом в реальное описание кинетики начальных стадий гомоэпитаксии арсенида галлия. В них использовалась стандартная техника статистической механики в комбинации с вычислениями поверхностной энергии различных конфигураций методом функционала плотности и, в общем, это хороший подход, позволяющий объяснить макроскопические закономерности роста микроскопической физикой и химией начальных стадий. Однако если пытаться расширить его на случай большего заполнения поверхности, то возникает вопрос – не будут ли образовываться зародыши на новом монослое арсенида галлия и не приведет ли данный подход к 3D зародышеобразованию. Другими словами, требуется согласование данного микроскопического подхода с макроскопическим подходом. Макроскопический подход предполагает получение уравнения состояния растущей поверхности с фазовым переходом первого рода.

Хорошо известно, что на поверхности (001) арсенида галлия происходят 2D фазовые переходы (ФП) порядок – беспорядок, переходы между различными реконструкциями, ФП при спонтанном образовании зародышей и т.д [12 – 16]. 2D фазовые переходы на поверхности (001) арсенида галлия бывают как первого рода или разрывные переходы, так и непрерывные переходы второго рода. Движущей силой ФП являются так называемые латеральные взаимодействия. Для существования ФП первого рода латеральные взаимодействия в решеточном газе между соседними ячейками должны носить характер потенциала притяжения. Именно величина латеральных взаимодействий будет определять величину скачка параметра дальнего порядка или степень заполнения и завершения поверхности новым монослоем арсенида галлия.

Данная работа посвящена рассмотрению гомоэпитаксиального роста арсенида галлия на поверхности $(001) - \beta(2 \times 4)$ как 2D фазового перехода первого рода в решеточном газе адсорбированных ростовых компонентов.

Экспериментально установлено, что 2D эпитаксиальный рост одного монослоя воспроизводит ту же реконструкцию $\beta(2 \times 4)$, которая имеется на исходной поверхности. Чтобы воспроизвести элементарную ячейку $\beta(2 \times 4)$, необходимо заполнить все узлы канавки исходной реконструкции, то есть встроить 2 атома галлия и 4 атома мышьяка; тогда возникнет гладкая поверхность, которую затем заполняем кластером из 6 атомов галлия и двух димеров мышьяка. Возникает новая элементарная ячейка $\beta(2 \times 4)$.

Ясно, что заполнение атомами галлия и мышьяка узлов канавки исходной реконструкции вначале повышает поверхностную энергию, тогда как дальнейшее встраивание атомов до реконструкции $\beta(2 \times 4)$ стабилизирует поверхность и компенсирует энергетические затраты. Поэтому весь процесс гомоэпитаксии можно представить следующим образом:

$$A(P_{\mathrm{Ga}}, P_{\mathrm{As}}) \to (\Theta, \Theta_{\mathrm{GaAs}})^{\mathrm{gas}} \to \Theta_{\mathrm{GaAs}}^{\mathrm{cryst}};$$

здесь $A(P_{\mathrm{Ga}}, P_{\mathrm{As}})$ – адсорбционная фаза; она определяется величинами падающих на поверхность потоков галлия и мышьяка или их эквивалентным давлением над поверхностью; $(\Theta, \Theta_{\mathrm{GaAs}})^{\mathrm{gas}}$ – решеточный газ, состоящий из двух видов газов; $\Theta$ – решеточный газ, заполнение ячеек которого при встраивании атомов галлия и мышьяка повышает поверхностную энергию на величину $\Delta E$; $\Theta_{\mathrm{GaAs}}$ – решеточный газ, возникающий при взаимодействии адсорбционной фазы $A$ с газом $\Theta$, то есть при дальнейшем встраивании атомов в заполненные ячейки решеточного газа $\Theta$. Образование заполненной ячейки решеточного газа $\Theta_{\mathrm{GaAs}}$ приводит к стабилизации конечной конфигурации и понижает поверхностную энергию на величину $E_{st}$. Следовательно, для получившегося энергетического выигрыша $E$ в рамках теории среднего поля можно записать выражение

$$E = -E_{st} \cdot \Theta \cdot \Theta_{\mathrm{GaAs}}. \tag{1}$$

Ячейки промежуточного решеточного газа $\Theta$ представляют собой наиболее долгоживущие конфигурации, возникающие при встраивании атомов галлия и мышьяка. Все другие возможные короткоживущие конфигурации мы определяем как адсорбционную фазу $A$. Вероятной ячейкой газа $\Theta$ может служить ячейка трехмерной структуры $\beta 1(2\times 4)$. Ее образование требует наименьших энергетических затрат $\Delta E$ относительно исходной $\beta(2\times 4)$. Ячейки $\Theta_{\mathrm{GaAs}}$ будут ячейками структуры $\beta(2\times 4)$, поскольку новый монослой арсенида галлия воспроизводит структуру исходной поверхности.

Необходимо подчеркнуть, что для гомоэпитаксии бинарного соединения со сложной реконструкцией поверхности (001) требуется видоизменить модель решеточного газа, обычно применяемую для адсорбции простых газов на простых, обычно металлических, поверхностях. В этом случае размер ячейки решеточного газа примерно совпадает с размером отдельной частицы адсорбата. В нашем случае ячейки решеточных газов $\Theta$ и $\Theta_{\mathrm{GaAs}}$, как будет показано ниже, совпадают с размером элементарной ячейки реконструированной поверхности $(2\times 4)$.

Применяя обычный статистический анализ для свободной энергии, связанной с решеточным газом $\Theta_{\mathrm{GaAs}}$, имеем:

$$\begin{gathered} F_{\mathrm{GaAs}} = -\epsilon \cdot \Theta_{\mathrm{GaAs}} + \\ + kT[\Theta_{\mathrm{GaAs}} \cdot \ln(\Theta_{\mathrm{GaAs}}) + (1-\Theta_{\mathrm{GaAs}} \cdot \ln(1-\Theta_{\mathrm{GaAs}})] + \\ + 1/2 E_i \cdot \Theta^2_{\mathrm{GaAs}} - E_{st}\Theta_{\mathrm{GaAs}} \cdot \Theta, \end{gathered} \tag{2}$$

где $\epsilon$ есть так называемая вертикальная энергия связи атомов галлия и мышьяка с поверхностью (back bonding). В выражении (2) включена энергия парного отталкивания соседних узлов $E_i$. Однотипные ячейки будут всегда отталкиваться. Для свободной энергии, связанной с образованием решеточного газа $\Theta$, имеем:

$$F = \Delta E \cdot \Theta + kT[\Theta \ln \Theta + (1-\Theta)\ln(1-\Theta)]. \tag{3}$$

Минимизируя выражение (3) по параметру $\Theta$ и подставляя в (2), получаем уравнение состояния растущей поверхности:

$$\mu_{\mathrm{GaAs}} = \frac{\partial F_{\mathrm{GaAs}}}{\partial \Theta_{\mathrm{GaAs}}}$$

или:

$$\frac{\mu_{\mathrm{As}} + \mu_{\mathrm{Ga}} + \epsilon}{kT} = \\ = \ln\left[\frac{\Theta_{\mathrm{GaAs}}}{1-\Theta_{\mathrm{GaAs}}}\right] + \left[\frac{E_i\Theta}{kT} - \frac{\dfrac{E_{st}\Theta}{kT}}{1+\exp\left(\dfrac{\Delta E - E_{st}\Theta}{kT}\right)}\right]. \tag{4}$$

Здесь мы заменили химический потенциал $\mu_{\mathrm{GaAs}} = \mu_{\mathrm{As}} + \mu_{\mathrm{Ga}}$. Уравнение (4) аналогично уравнению состояния Ван-Дер-Ваальса, то есть при достаточно низких температурах $(T < T_c)$ будет происходить фазовый переход первого рода.

На рис.1 показаны расчетные изотермы ФП для различных значений параметров латерального взаимодействия $\Delta E$ и $E_{st}$. Важной характеристикой является величина $\Theta^{\mathrm{trans}}_{\mathrm{GaAs}}$, при которой ветвь решеточного газа переходит в кристаллическую ветвь (начало вертикальной прямой). Решеточный газ становится нестабильным и образуются 2D кристаллические зародыши новой фазы. Эксперимент показывает, что уже при степени заполнения $\Theta^{\mathrm{trans}}_{\mathrm{GaAs}} = 0.05$ образуются 2D островки новой фазы [4, 17]. Поэтому, принимая существование стабильного решеточного газа для области степеней заполнения $\Theta_{\mathrm{GaAs}} < 0.05$, получаем, что величины параметров латерального взаимодействия должны быть $E_{st} > 0.6$ эВ и $\Delta E > 0.3$ эВ. Величина энергии отталкивания парных узлов реше-

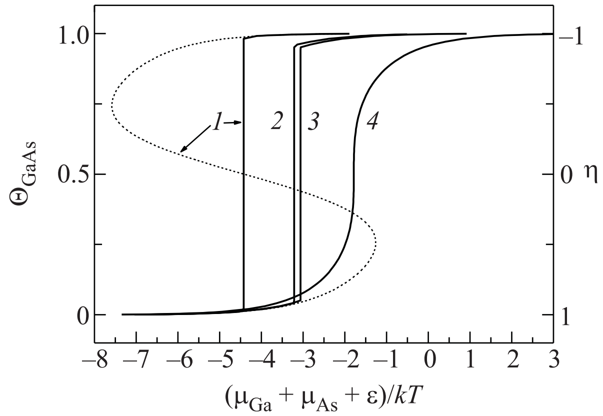


Рис.1. Изотермы фазового перехода решеточного газа в 2D кристалл $(\Theta, \Theta_{\mathrm{GaAs}})^{\mathrm{gas}} \to \Theta^{\mathrm{cryst}}_{\mathrm{GaAs}}$ при гомоэпитаксии арсенида галлия на поверхности $(001)\beta-(2\times 4)$, рассчитанные по уравнению (4) в тексте для различных значений параметров: *1* – $E_{st} = 0.8$ эВ, $\Delta E = 0.4$ эВ, $T = 580\,^\circ$C $(\Theta^{\mathrm{trans}}_{\mathrm{GaAs}} = 0.01)$; *2* – $E_{st} = 0.6$ эВ, $\Delta E = 0.3$ эВ, $T = 540\,^\circ$C, *3* – $E_{st} = 0.6$ эВ, $\Delta E = 0.3$ эВ, $T = 580\,^\circ$C, $(\Theta^{\mathrm{trans}}_{\mathrm{GaAs}} = 0.05)$; *4* – критическая изотерма $T_c = 1840\,^\circ$C. Пунктирной линией показана метастабильная и нестабильная ветви ФП изотермы 1

точного газа $E_i = 0.15$ эВ была определена нами в работе [12].

Важно отметить, что $\Theta_{\mathrm{GaAs}}$ меняется скачком практически от 0 до предельного заполнения поверхности монослоем новой фазы (вертикальные прямые на рис.1). Латеральное взаимодействие играет роль постоянно действующего внутреннего поля упорядочения в течение всего процесса ФП, то есть до образования полного 2D монослоя кристаллической новой фазы арсенида галлия. Теоретические расчеты показывают, что поверхностная энергия трехмерной структуры $\beta 1(2\times 4)$, которая получается при встраивании двух атомов галлия и двух атомов мышьяка в исходную элементарную ячейку $\beta(2\times 4)$, увеличивается на 0.36 эВ [5], что совпадает с необходимым значением $\Delta E$. Поэтому можно считать, что ячейка решеточного газа $\Theta$ равна элементарной ячейке $(2\times 4)$, то есть имеет площадь, в 8 раз большую, чем поверхностный узел кристаллической структуры арсенида галлия.

Как мы уже указывали, для полного завершения монослоя необходимо, чтобы величина $E_{st} \geq 2\Delta E \geq$ $\geq 0.6$ эВ. Когда происходит встраивание в структуру $\beta 1(2\times 4)$ шести атомов галлия и четырех атомов мышьяка, возникает новая элементарная ячейка с исходной реконструкцией $\beta(2\times 4)$ и частично происходит компенсация поверхностной энергии $\sim 0.36$ эВ, связанной с гранью (001). Однако такие изолированные элементарные ячейки имеют избыточную энергию, связанную с энергией боковых монослойных ступеней. Для уменьшения поверхностной энергии боковых ступеней необходима ассоциация отдельных ячеек в 2D зародыши. Поэтому требуется выбрать $E_{st} \sim 0.6-0.8$ эВ, что примерно в два раза больше величины 0.36 эВ, так как площадь боковых граней (110) отдельной ячейки $\beta(2\times 4)$, равная 136 Å$^2$, почти такая же, как площадь грани (001) этой ячейки (128 Å$^2$).

Интересно отметить, что выражение (1) является энергией парного взаимодействия ячеек решеточного газа $\Theta_{\mathrm{GaAs}}$ с эффективным потенциалом притяжения, так как $E = -E_{st}\Theta\Theta_{\mathrm{GaAs}} = -E'_{st}(\Theta_{\mathrm{GaAs}})\cdot\Theta^2_{\mathrm{GaAs}}$, где теперь, однако, параметр $E'_{st}(\Theta_{\mathrm{GaAs}})$ является возрастающей функцией степени заполнения поверхности. Он меняется от почти 0 до $E_{st}$ при увеличении $\Theta_{\mathrm{GaAs}}$ от 0 до 1. Поэтому фактически (1) обеспечивает самоупорядочение в ФП и, следовательно, завершение монослоя прежде, чем начнется строительство нового монослоя.

Итак, в нашей модели решеточного газа поверхность разбита на $N$ идентичных прямоугольных ячеек размером $(2\times 4)$ и локальная переменная $c_i = 1$, если полностью построена новая ячейка $\beta(2\times 4)$. В других случаях $c_i = 0$. Введем параметр дальнего порядка $\eta$, который связан с $\Theta_{\mathrm{GaAs}}$ соотношением $\Theta_{\mathrm{GaAs}} = 1-\eta/2$. Он определен таким образом, что для исходной поверхности $\beta(2\times 4)$, когда $\Theta_{\mathrm{GaAs}} = 0$, $\eta = 1$. Если же поверхность полностью покрыта одним монослоем $\Theta_{\mathrm{GaAs}} = 1$, $\eta = -1$. При степени заполнения $\Theta_{\mathrm{GaAs}} = 0.5$, $\eta = 0$. Удобство введения $\eta$ связано с тем, что теперь величину $(\mu_{\mathrm{As}}+\mu_{\mathrm{Ga}}+\epsilon)/kT$ можно рассматривать как внешнее поле, наложенное на ростовую систему. Энергия взаимодействия с этим полем определяется произведением внешнего поля на параметр упорядочения. В точке ФП внешнее поле меняет направление, то есть проходит через нуль. В этой точке находятся в равновесии друг с другом фазы с противоположными по знаку значениями параметра порядка $\eta = +-(at)^{1/2}$, где $a\sim 4/3$, $t = (T-T_c)/T_c$ (см. рис.1). При обычных температурах роста $T \sim 540-580\,^\circ$C параметр порядка фактически меняется от 1 до $-1$, так как критическая температура очень высокая ($\sim 2115$ K). Иначе говоря, спонтанный параметр порядка в этой области температур значительно больше индуцированного внешним полем.

Поведение параметра дальнего порядка $\eta$ мы изучали экспериментально методом ДБЭО 'in situ' от растущей поверхности. Все эксперименты проводились в СВВ-камере установки МЛЭ фирмы Riber, оснащенной дифрактометром быстрых электронов на отражение с энергией пучка электронов 12 кэВ. Размер образца арсенида галлия с ориентацией $(001)\pm$ $\pm 0.5^\circ$ составлял $3\times 3$ мм, что обеспечивало достаточную однородность как температуры, так и морфологического совершенства поверхности. Все детали эксперимента описаны в [12].

Анализировалось поведение полной дифракционной картины в азимуте $[1\bar{1}0]$. На рис.2 показаны изменения интенсивности дифракционных рефлексов (00), (0 1/4) и (0 2/4) при начале эпитаксиального роста. Прежде всего отметим, что период осцилляций всех рефлексов одинаков и соответствует времени заполнения одного монослоя.

Отметим, что интенсивность рефлекса (0 1/4) при инициировании роста увеличивается, тогда как интенсивности рефлексов (0 0) и (0 2/4) уменьшаются. Изменение интенсивности рефлексов указывает на образование фазы, нерелаксированной $\alpha(2\times 4)$-н при инициировании роста [18]. Начальный пик интенсивности рефлекса (0 1/4) на рис. 2 соответствует степени заполнения $\sim 0.07$. Следовательно, можно считать, что вплоть до этой величины процессы зародышеобразования блокированы и рост в начальной

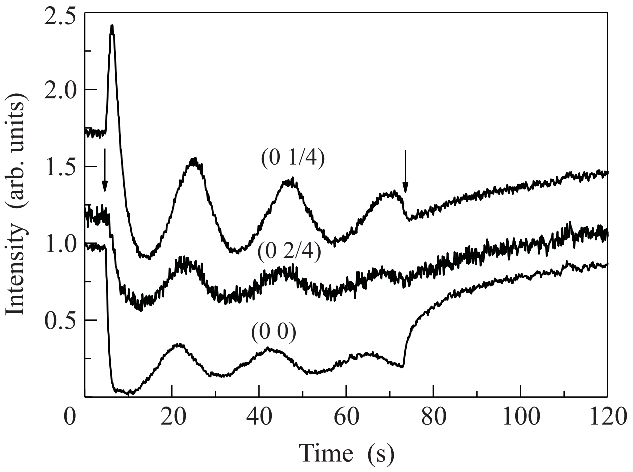


Рис.2. Изменение интенсивности рефлексов (0 0), (0 1/4), (0 2/4) от растущей поверхности при $T = 540\,^\circ$C и давлении мышьяка $1.7 \cdot 10^{-6}$ торр. Стрелками указаны начало и окончание подачи потока галлия на поверхность

стадии связан главным образом с формированием адсорбционной фазы и решеточных газов $\Theta$ и $\Theta_{\mathrm{GaAs}}$. Этот экспериментальный факт находится в резком противоречии с работами [5–7], в которых предполагается, что процессы зародышеобразования происходят с первых моментов эпитаксии. Размер критического зародыша в этих работах принимается равным одному встроенному атому.

Поскольку время появления максимальной амплитуды первой осцилляции рефлекса (0 1/4) точно соответствует периоду заполнения одного монослоя, то изменение интенсивности этого рефлекса действительно корректно отражает поведение параметра дальнего порядка $I_{1/4}/I_0 = |\eta|^2$.

Сложное поведение интенсивности рефлекса (0 1/4) от растущей поверхности требует отдельного рассмотрения.

Таким образом, гомоэпитаксия арсенида галлия рассматривается нами как 2D фазовый переход первого рода. В рамках теории среднего поля получено уравнение состояния растущей поверхности. Определены параметры латерального взаимодействия между ячейками решеточного газа. Построенная теория адекватно описывает экспериментальные результаты по дифракции от растущей поверхности.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты # 05–03–32660, # 06–02–16914).

1. J. H. Neave, B. A. Joyce, and P. J. Dobson, Appl. Phys. A **31**, 1 (1983).
2. M. Itoh, Progress in Surf. Sci. **66**, 53 (2001).
3. B. Joyce and D. Vvedensky, Material Science and Engeneering R **46**, 127 (2004).
4. A. R. Avery, H. T. Dobbs, and D. M. Holmes, Phys. Rev. Lett. **70**, 3938 (1997).
5. P. Kratzer, E. Penev, and M. Scheffler, Appl. Phys. A **75**, 79 (2002).
6. E. Penev, P. Kratzer, and M. Scheffler, Appl. Surf. Sci. **216**, 436 (2003).
7. P. Kratzer and M. Scheffler, Phys. Rev. Lett. **88**, 036102 (2002).
8. A. Ishii and T. Kawamura, Surf. Sci. **436**, 38 (1999).
9. P. Kratzer, C. G. Morgan, and M. Scheffler, Phys. Rev. B **59**, 15246 (1999).
10. Y. Kangawa, T. Ito, and A. Taguchi, Appl. Surf. Sci. **190**, 517 (2002).
11. M. Itoh, G. R. Bell, and A. R. Avery, Phys. Rev. Lett. **81**, 633 (1998).
12. Ю. Г. Галицын, Д. В. Дмитриев, В. Г. Мансуров и др., Письма в ЖЭТФ **81**, 766 (2005).
13. Ю. Г. Галицын, Д. В. Дмитриев, В. Г. Мансуров и др., Письма в ЖЭТФ **84**, 596 (2006).
14. H. Yamaguchi and Y. Horikoshi, Phys. Rev. B **51**, 9836 (1995).
15. V. P. Labella, Z. Ding, and D. Bullock, Int. J. Modern Phys. B **15**, 2301 (2001).
16. Z. Ding, D. Bullock, and P. Thibado, Surf. Sci. **540**, 491 (2003).
17. G. R. Bell, M. Itoh, T. S. Jones et al., Surf. Sci. **423**, L280 (1999).
18. Q. K. Xue, T. Hashizume, and A. Ichimiya, Sci. Rep. RITU A **44**, 113 (1997).