

ПОВЕРХНОСТЬ Cs/GaAs(100): ДВУМЕРНЫЙ МЕТАЛЛ ИЛИ ХАББАРДОВСКИЙ ДИЭЛЕКТРИК?

О.Е.Терещенко^{+*}, А.Н.Литвинов^{*}, В.Л.Альперович^{+*1)}, А.С.Терехов^{+*}

⁺ Институт физики полупроводников Сибирского отделения РАН
630090 Новосибирск, Россия

^{*} Новосибирский государственный университет
630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 21 сентября 1999 г.

Экспериментально изучена эволюция спектров характеристических потерь энергии электронов при нанесении цезия на поверхность GaAs(100) с различными сверхструктурными реконструкциями. Показано, что возникновение пиков потерь в запрещенной зоне GaAs при Cs покрытиях $\theta_{Cs} > 0.5$ монослоя обусловлено резонансами в продольной и поперечной поляризуемости двумерных металлических кластеров адатомов.

PACS: 61.16.-d, 68.35.Bs, 73.20.Dx

Поверхность арсенида галлия с адсорбированными слоями щелочных металлов представляет большой интерес для исследования взаимодействия адатомов с полупроводниками. До сих пор наиболее полные данные по структуре и электронным свойствам таких систем были получены для неполярной грани GaAs(110) [1]. В частности, методом сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) было показано, что на поверхности Cs/GaAs(110) при малых покрытиях $\theta_{Cs} < 0.5$ монослоя (ML) образуются упорядоченные одномерные ряды, а при $\theta_{Cs} > 0.5$ ML – двумерные кластеры адатомов цезия [2]. В работе [3] в спектрах характеристических потерь энергии электронов на поверхности Cs/GaAs(110) при $\theta_{Cs} \geq 0.5$ ML обнаружены интенсивные пики потерь внутри запрещенной зоны полупроводника, с энергиями $E \approx 0.4$ эВ (пик L1) и 1 эВ (L2), происхождение которых связывалось с формированием диэлектрического состояния Мотта – Хаббарда, возникающего благодаря кулоновским корреляциям в системе двумерных электронов. Для поверхности GaAs(110) эта идея была теоретически обоснована в [4]. Позднее сопоставление спектров потерь, измеренных при нанесении различных щелочных металлов на поверхность GaAs(110), позволило предложить альтернативную картину формирования структуры и электронных свойств такой поверхности, состоящую в образовании двумерных кластеров адатомов с металлическим электронным спектром [5]. Для выяснения степени общности обнаруженного явления и справедливости предложенных в [3–5] моделей в данной работе экспериментально изучена эволюция спектров характеристических потерь энергии электронов при нанесении Cs на полярную грань GaAs(100) с различными сверхструктурными реконструкциями.

Эксперимент проводился на эпитаксиальных слоях p -(100)GaAs с концентрацией дырок $p \approx 10^{18}$ см⁻³. Чистая поверхность GaAs(100) с различными сверхструктурными реконструкциями приготавливалась по методике, описанной в [6], путем

¹⁾ e-mail: alper@thermo.isp.nsc.ru

удаления оксидов в растворе HCl в изопропиловом спирте в атмосфере сухого азота, переноса в сверхвысоковакуумный электронный спектрометр ADES-500 в герметичном контейнере без контакта с воздухом и последующего прогрева в вакууме. Базовое давление в аналитической и препаративной камерах составляло $3 \cdot 10^{-11}$ и $8 \cdot 10^{-11}$ торр, соответственно. Структура и состав поверхности определялись методами дифракции медленных электронов (ДМЭ) и рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС). Нанесение Cs и все измерения проводились при комнатной температуре. Эффективная толщина цезиевого покрытия θ_{Cs} определялась по зависимости площади фотоэмиссионного пика Cs3d_{5/2} от времени нанесения (дозы) цезия. При увеличении дозы площадь пика, пропорциональная количеству Cs на поверхности, возрастала и затем насыщалась. За один монослой $\theta_{Cs} = 1$ ML принималась толщина покрытия, соответствующая насыщенному значению площади пика [7]. Спектры характеристических потерь измерялись при энергии падающих электронов 15 эВ, с полным энергетическим разрешением не хуже 90 мэВ и угловым разрешением 1.5°.

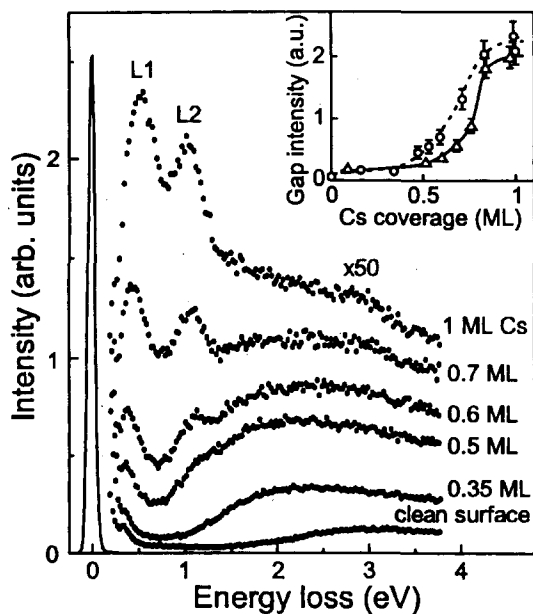


Рис.1. Эволюция спектров энергетических потерь электронов при адсорбции цезия на As-стабилизированную поверхность (100)GaAs(2x4). Сплошной линией показан пик упруго отраженных электронов. $T = 300$ K, $\vartheta_i = \vartheta_s = 60^\circ$. На вставке показаны зависимости интегральной интенсивности потерь внутри запрещенной зоны GaAs от величины θ_{Cs} . Кружками показана зависимость, полученная при нанесении Cs на As-стабилизированную поверхность (100)GaAs(2x4), треугольниками – на Ga-стабилизированную поверхность (100)GaAs(4x2). Линии проведены для удобства восприятия

На рис.1 показаны спектры характеристических потерь энергии электронов, измеренные при нанесении цезия на чистую As-стабилизированную поверхность с реконструкцией (2x4). Видно, что на чистой поверхности отсутствуют потери энергии на переходах с участием поверхностных состояний внутри запрещенной зоны GaAs $E_g \approx 1.42$ эВ [8]. Слабый пик при $E \approx 0.36$ эВ обусловлен возбуждением колебаний C-H-связей остаточных метановых радикалов с концентрацией ≤ 0.01 ML [6]. При нанесении цезия вплоть до половины монослоя происходит сдвиг порога переходов в сторону меньших энергий, а также значительное (в несколько раз) увеличение интенсивности потерь во всем энергетическом диапазоне. При покрытии $\theta_{Cs} \approx 0.5$ ML в спектре возникают и при дальнейшем увеличении θ_{Cs} быстро растут два пика потерь L1 и L2 при $E \approx 0.52$ эВ и 1.05 эВ, соответственно. Аналогичные изменения

происходили в спектрах потерь при нанесении Cs на Ga-стабилизированную поверхность (100)GaAs(4 × 2), а также на поверхность с промежуточным составом и реконструкцией (3 × 1)/(3 × 6). На вставке к рис.1 показаны зависимости интегральной интенсивности потерь энергии электронов в области запрещенной зоны от величины покрытия для случаев нанесения цезия на As- и Ga-стабилизированные поверхности GaAs(100). Видно, что обе зависимости имеют пороговый характер и обусловлены, главным образом, ростом интенсивности пиков L1 и L2 при $\theta_{Cs} > 0.5$ ML.

Качественное сходство спектров потерь, измеренных в данной работе при нанесении Cs на поверхности GaAs(100), с различными сверхструктурами, а также сходство со спектрами, полученными ранее на неполярной грани Cs/GaAs(110) [3], свидетельствует об универсальности механизмов формирования структуры и электронных свойств границы раздела арсенида галлия с адсорбированными слоями цезия. Можно предположить, что на поверхности Cs/GaAs(100), как и на Cs/GaAs(110) [2, 3, 5], возникновение пиков потерь L1 и L2 обусловлено фазовым переходом, при котором отдельные атомы Cs объединяются в плотноупакованные двумерные кластеры. Причина перехода состоит в том, что при увеличении степени покрытия диполь-дипольное отталкивание поляризованных цезиевых атомов, благодаря эффекту деполяризации, сменяется притяжением из-за образования латеральной связи между атомами.

В работе [3] пики L1 и L2 были объяснены формированием диэлектрического состояния Мотта – Хаббарда в системе Cs/GaAs(110) при степени покрытия $0.5 \leq \theta_{Cs} \leq 1$ ML. В частности, пик L1 связывался с переходом через щель в хаббардовском диэлектрике. В то же время, в недавней работе [5] при сопоставлении спектров потерь, измеренных на границах раздела (110)GaAs с различными щелочными металлами, была выявлена корреляция положений пиков L1 и L2 с энергией поверхностных плазмонов в металлах. Более того, при увеличении толщины покрытия свыше одного монослоя (при низкой температуре) пик L2 смещался к энергии поверхностных плазмонов металла. Эти данные вместе с результатами сканирующей туннельной микроскопии [2], свидетельствуют об образовании двумерных кластеров атомов с металлическим электронным спектром. При этом пик L2 интерпретировался как возбуждение плазмонов в двумерных кластерах, а пик L1 – как возбуждение связанных плазменных колебаний в системе кластеров [5]. В такой картине рост интенсивности и постоянство энергетических положений пиков объяснялись тем, что при увеличении θ_{Cs} растет площадь, занятая кластерами, в то время как плотность атомов в кластерах остается неизменной.

Для дальнейшего выяснения природы пиков L1 и L2 мы измерили спектры потерь на поверхности Cs/GaAs(100) при различных углах падения ϑ_i и рассеяния ϑ_s электронов (рис.2). При изменении углов энергетическое положение пиков L1 и L2 остается постоянным в пределах 50 мэВ и 100 мэВ, соответственно, что согласуется с результатами для поверхности (110)GaAs [3, 5]. В то же время, соотношение амплитуд пиков существенно зависит от углов: из рис. 2 видно, что амплитуда пика L2 растет при увеличении ϑ_i и ϑ_s . Повышение эффективности неупругих потерь при уменьшении угла между векторами импульса падающих и рассеянных электронов (в случае рассеяния на поверхности – для более настильных траекторий) характерно для возбуждения продольных плазменных колебаний [9]. Таким образом, измеренные угловые зависимости позволяют заключить, что пик L2 соответствует

продольным плазмонам в двумерных цезиевых кластерах. Отметим, что для корректного описания таких плазмонов следует учитывать частичную передачу заряда от электроположительных атомов цезия на орбитали поверхностных атомов полупроводника [1].

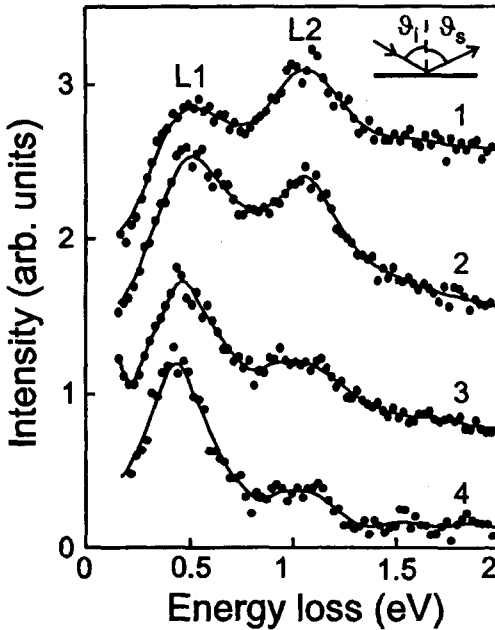


Рис.2. Спектры потерь, измеренные на поверхности Cs/(100)GaAs с $\theta_{Cs} = 1$ ML, при различных углах падения ϑ_i и рассеяния ϑ_s электронов. Спектры 1–3 соответствуют фиксированному значению $\vartheta_i = 60^\circ$ и различным $\vartheta_s = 85^\circ$ (кривая 1), 60° (2) и 10° (3). Спектр 4 соответствует $\vartheta_i = \vartheta_s = 30^\circ$. Спектры 1, 2 и 4 сдвинуты по вертикали на 1, 0.5 и 0.2 единицы, соответственно. Линии проведены для удобства восприятия. На вставке схематично показана геометрия эксперимента

Амплитуда пика L1 при изменении углов изменяется гораздо слабее, чем амплитуда пика L2. Следовательно, пик L1 имеет иную природу и не связан с возбуждением продольных плазмонов. Судя по энергетическому положению, пик L1 может быть обусловлен одночастичными переходами электронов из валентной зоны GaAs на пустые металл-индуцированные состояния выше уровня Ферми [10]. Сходство дозовых зависимостей интенсивности пиков L1 и L2 можно объяснить влиянием двумерной плазмы на одночастичные переходы. Известно, что взаимодействие плазменных колебаний и одночастичных переходов приводит к комбинированным возбуждениям – так называемым межзонным (поперечным) плазмонам [11–13]. Таким образом, пик L1 можно интерпретировать как поперечное возбуждение в двумерных цезиевых кластерах.

Продольные двумерные плазмоны являются бесщелевыми и имеют сильную дисперсию: для малых волновых векторов q частота плазмонов $\omega_{2D} \propto \sqrt{q}$ [11]. Однако в эксперименте не наблюдается существенной зависимости положения пика L2 (а также пика L1) от угла вылета рассеянных электронов ни для поверхности Cs/GaAs(110) [3, 5], ни для исследованной в данной работе поверхности Cs/GaAs(100). Причина, по-видимому, состоит в том, что плазменные колебания локализованы в кластерах, поэтому наблюдаемая частота отвечает конечному значению волнового вектора порядка обратного размера кластера [14]. Следует подчеркнуть, что в отличие от Cs/GaAs(110) [2], поверхность Cs/GaAs(100) при $\theta_{Cs} \approx 1$ ML является неупорядоченной, поэтому описание поверхностных элементарных возбуждений с помо-

щью закона дисперсии, строго говоря, неприменимо. В работе [15] разупорядочение наблюдалось с помощью СТМ при нанесении Cs на As-стабилизированную поверхность (100)GaAs(2 × 4). Мы определяли степень разупорядоченности границы Cs/GaAs(100) методом ДМЭ, а также путем измерения ширины $\Delta\vartheta_s$ углового распределения упруго рассеянных электронов. Для всех исходных реконструкций величина $\Delta\vartheta_s$ увеличивалась от $\Delta\vartheta_s \approx 5^\circ$ на чистой поверхности до $\Delta\vartheta_s \sim \pi$ при $\theta_{Cs} \approx 1$ ML. На поверхности (100)GaAs(2 × 4) увеличение фона диффузно-рассеянных электронов и уширение рефлексов в картине ДМЭ наблюдалось, начиная с $\theta_{Cs} \sim 0.1$ ML; при $\theta_{Cs} \sim 0.5$ ML сверхструктура (2 × 4) полностью исчезала. Ga-стабилизированная поверхность оказалась более устойчивой к разупорядочению. При $\theta_{Cs} < 0.3$ ML не наблюдалось ухудшения картины ДМЭ, что согласуется с результатами работы [16] по наблюдению диффузии и упорядочения Cs на поверхности Cs/GaAs(100) при малых покрытиях; сверхструктура (4 × 2) сохранялась вплоть до 0.75 ML и переходила в (1 × 1) лишь при $\theta_{Cs} \approx 1$ ML. Таким образом, практически одинаковое поведение спектров потерь наблюдается на хорошо упорядоченной поверхности Cs/GaAs(110) [2, 3, 5], на разупорядоченной границе Cs/GaAs(100) с исходной As-стабилизированной реконструкцией (2 × 4), а также на границе с промежуточной степенью порядка, полученной при нанесении цезия на Ga-стабилизированную поверхность с реконструкцией (4 × 2).

В заключение заметим, что полученные результаты свидетельствуют о том, что поверхность Cs/GaAs представляет собой не хаббардовский диэлектрик, а двумерный металл. Для объяснения электронного спектра существенно, что цезиевый слой является "гранулированным металлом", то есть состоит из двумерных кластеров. Особенность полярной грани GaAs с ориентацией (100) заключается в разупорядочении границы Cs/GaAs(100) при нанесении ~ 1 ML Cs на поверхности с различными реконструкциями. Электронный спектр границы раздела Cs/GaAs(100) при достаточно больших покрытиях $\theta_{Cs} > 0.5$ ML имеет универсальный характер и обусловлен продольными и поперечными возбуждениями в двумерных металлических кластерах. При этом один из пиков характеристических потерь энергии электронов (при $E \approx 1$ эВ) обусловлен возбуждением продольных локализованных плазмонов в цезиевых кластерах, а другой (при $E \approx 0.5$ эВ) предположительно связан с переходами из валентной зоны на металл-индуцированные состояния. Эти выводы справедливы, по-видимому, и для границ раздела GaAs с другими щелочными металлами.

Авторы выражают благодарность Н.С.Рудой за выращивание эпитаксиальных слоев GaAs, а также А.О.Говорову, А.В.Чаплику и М.В.Энтину за полезные обсуждения и замечания. Работа поддержана по программе Министерства науки "Поверхностные атомные структуры" (грант 4.4.99) и по программе "Интеграция" Министерства образования Российской Федерации через Новосибирский государственный университет (проект 274).

-
1. F.Bechstedt and M.Scheffler, Surf. Sci. Rep. **18**, 145 (1993).
 2. L.J.Whitman, J.A.Stroschio, R.A.Dragoset, and R.J.Celotta, Phys. Rev. Lett. **66**, 1338 (1991).
 3. E.W.Plummer, T.M.Wong, and N.J.DiNardo, Phys. Rev. Lett. **65**, 2177 (1990).
 4. O.Pankratov and M.Scheffler, Phys. Rev. Lett. **70**, 351 (1993).
 5. U.del Pennino, R.Company, B.Salvarani, and C.Mariani, Surf. Sci. **409**, 258 (1998).
 6. O.E.Tereshchenko, S.I.Chikichev, and A.S.Terekhov, J. Vac. Sci. Technol. **A17** (1999).
 7. D.Rodway, Surf. Sci. **147**, 103 (1984).

8. O.E.Tereshchenko, S.I.Chikichev, and A.S.Terekhov, *Appl. Surf. Sci.* **214**, 7580 (1998).
9. В.Ф.Кулешов, Ю.А.Кухаренко, С.А.Фридрихов и др., *Спектроскопия и дифракция электронов при исследовании поверхности твердых тел*, М.: Наука, 1985.
10. V.L.Alperovich, A.G.Paulish, and A.S.Terekhov, *Phys. Rev.* **B50**, 5480 (1994).
11. A.V.Chaplik, *Surf. Sci. Rep.* **5**, 289 (1985).
12. M.Nakayama, T.Kato, and K.Ohtomi, *Solid State Commun.* **50**, 409 (1984).
13. T.Aruga, H.Tochihara, and Y.Murata, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 372 (1984).
14. A.V.Chaplik and A.O.Govorov, *J. Phys. Condens. Matter* **8**, 4071 (1996).
15. J.Kim, M.C.Gallagher, and R.F.Willis, *Appl. Surf. Sci.* **67**, 286 (1993).
16. V.L.Alperovich and D.Paget, *Phys. Rev.* **B56**, R15565 (1997).