

# C<sub>60</sub>分子在 GaAs(001)表面的外延生长的 扫描隧道显微镜研究\*

凌 勇<sup>1),2)</sup> 薛其坤<sup>2)</sup> 陈皓明<sup>1)</sup> 樱井利夫<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup>(清华大学现代应用物理系, 北京 100084)

<sup>2)</sup>(日本东北大学金属材料研究所, 仙台 980)

(1996 年 7 月 19 日收到)

利用扫描隧道显微镜(STM)系统地研究了 C<sub>60</sub>薄膜在 GaAs(001)表面的异质外延生长。在 GaAs(001)2×4-β相表面,观察到 C<sub>60</sub>薄膜以非密排面进行生长,并在生长中有结构相变产生。实验数据表明,薄膜下层面心立方(fcc)的晶格常数比 C<sub>60</sub>晶体的晶格常数要大 13%;而薄膜的表层结构则展示了非理想的六角密堆(hcp)结构,其表面为 hcp(1100)面,生长过程是非理想的层状生长模式。在 GaAs(001)-c(4×4)衬底上, C<sub>60</sub>薄膜的表面仍然是 fcc(111)面,其结构参数与 C<sub>60</sub>晶体一致,但 C<sub>60</sub>薄膜采用了三维模式进行生长。

PACC: 6116P; 6855; 6160; 7280E

## 1 引 言

在过去几年中,人们已经使用扫描隧道显微镜(STM)对 C<sub>60</sub>薄膜在金属、半导体衬底上的形核、生长、结构、缺陷及电子性质等进行了广泛的研究<sup>[1-13]</sup>,并已得到了许多有意义的结果。

在金属表面<sup>[1-3]</sup>,由于 C<sub>60</sub>分子与衬底之间的相互作用为范德瓦尔斯力,因此分子在衬底表面表现出很强的流动性。STM 图像还表明, C<sub>60</sub>分子与衬底台阶之间的相互作用远强于分子与衬底表面之间的相互作用,因而在生长的初始阶段 C<sub>60</sub>分子首先吸附在台阶处;当台阶位置被完全覆盖后,分子将从台阶两侧向平台中心生长。在多层生长时,其生长模式为 Stranski-Krastanov(缩写为 S-K)模式,并且其生长面为 fcc(111)面。

在半导体 Si 表面, C<sub>60</sub>分子的生长与金属表面有所不同。由于 Si 表面原子高度局域的悬挂键存在,而使得 C<sub>60</sub>分子与 Si 的表面原子间存在着很强的相互作用<sup>[5,11]</sup>。因此,当 C<sub>60</sub>分子被沉积到 Si 表面时,分子将吸附在它的沉积位置,而不会在 Si 表面有任何移动,因此第一层的 C<sub>60</sub>分子仅仅表现出某种程度的局域有序。由于第一层 C<sub>60</sub>分子的存在降低了 Si 表面悬挂键的活性,因而使得在以后的外延层上的 C<sub>60</sub>分子不再受 Si 表面悬挂键的影响,而能够在表面上很容易地迁移。这就使得多层生长的 C<sub>60</sub>分子层的结构也展示了有序的

\* 国家自然科学基金重大项目资助的课题。

fcc(111)面. 研究还表明:  $C_{60}$  薄膜在 Si 表面的生长也是采取 S-K 模式<sup>[5]</sup>.

对于 GaAs(110)衬底, Li 等<sup>[4]</sup>的研究结果表明:  $C_{60}$  分子在 GaAs(110)表面的形核过程和生长过程与其在金属表面相似.

从上述研究结果中可以注意到  $C_{60}$  分子生长的两个共性, 一是它们都是按 S-K 模式生长, 二是其生长面都是密排面. 但是, 在 GaAs(001) $2 \times 4$ - $\beta$ 相上我们观察到了  $C_{60}$  薄膜以非密排面生长; 在 GaAs(001)-c( $4 \times 4$ )表面  $C_{60}$  薄膜是按三维模式进行生长.

## 2 实 验

本实验中所用的分子束外延-扫描隧道显微镜 (MBE-STM) 设备是由一台超高真空 STM 和一台 MBE 装置组成, 这两台设备通过一个超高真空阀相连接. 这样就使得我们能够使用 STM 观察外延生长后的新鲜样品表面.  $C_{60}$  粉末原料的制备方法详见有关文献<sup>[14]</sup>, 粉末的纯度高于 99.7%. 具体沉积参数是:  $C_{60}$  蒸发源的开口与样品表面的距离约为 10 mm,  $C_{60}$  分子的蒸发温度约为 300 °C. 通过对样品表面单位时间内分子的覆盖度进行测定可以得到:  $C_{60}$  分子在 GaAs 表面的沉积速率近似为 2ML/h.  $C_{60}$  分子的沉积是在 STM 室中进行的, 在蒸发过程中样品始终保持在室温. 实验中使用 GaAs(001)样品是由 MBE 生长制备的. 在 MBE 生长结束后, 选择不同的温度进行退火. 观察样品的反射式高能电子衍射 (RHEED) 图样, 当出现  $2 \times 4$ - $\beta$  相或 c( $4 \times 4$ )相典型的衍射图样时, 立即用传送杆将样品从 MBE 室取出送到 STM 室, 这样就得到了所需要的 GaAs(001) $2 \times 4$ - $\beta$  相或 c( $4 \times 4$ )相表面.

本实验中所有的 STM 图像都是在恒电流模式下采集的; 隧道电流都为 30 pA; 偏置电压是样品负偏压, 范围是 -3.0—-4.5 V. 在观测过程中, 样品始终保持在室温.

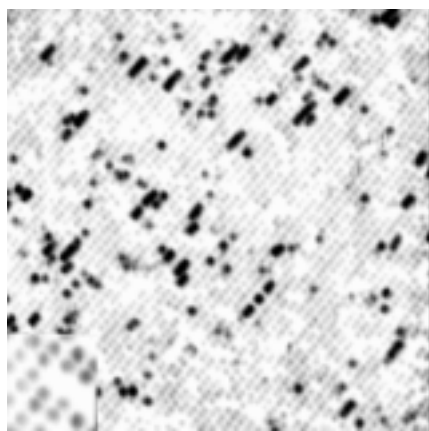
实验中覆盖度是根据以下原则确定的: 对于第一层分子, 考虑到每一个分子对占据了  $1.6 \text{ nm} \times 1.4 \text{ nm}$  的区域, 因此, 第一层被完全覆盖后, 在  $100 \text{ nm}^2$  面积上有 52 个分子存在; 同样, 对于第二层以后的分子层, 由于每一个分子占据  $1.13 \text{ nm} \times 1.6 \text{ nm}$  的区域, 因而在一个完整的分子层中, 在  $100 \text{ nm}^2$  面积上有 55 个分子存在. 由于相差很小, 因此我们定义 1ML 为在  $100 \text{ nm}^2$  的面积上存在有 55 个分子. 薄膜多层生长后的覆盖度是通过  $C_{60}$  分子在衬底表面的沉积速率乘以沉积时间得到的. 另外, 所有 STM 图中标出的晶向均为衬底的晶向.

## 3 实验结果与讨论

### 3.1 $C_{60}$ 薄膜在 GaAs(001) $2 \times 4$ - $\beta$ 相上的外延生长

1.  $C_{60}$  薄膜生长的初始阶段 在生长初始阶段(覆盖度小于 0.01ML), STM 图像显示了约 70% 的  $C_{60}$  分子占据着 As 原子空位行中的缺陷位置. 由于衬底表面的缺陷位置在整个表面所占的比例小于 10%, 这暗示了  $C_{60}$  分子在室温下具有流动性. 考虑到缺陷之间的平均间隔约为 8 nm, 因此可以认为  $C_{60}$  分子沿  $[1\bar{1}0]$  方向的迁移长度大于 4 nm; 由于  $C_{60}$

分子的运动受到缺陷的限制,因此无法给出迁移长度的上限.随着覆盖度增加到 0.02ML,从 STM 图像显示了约 20% 的 C<sub>60</sub>分子形成了 C<sub>60</sub>-C<sub>60</sub>分子对,每对中两个分子的间隔为 0.98 nm,小于 C<sub>60</sub>晶体的分子间隔(1.002 nm).由于 C<sub>60</sub>分子在表面的沉积位置是随机的,因而,C<sub>60</sub>分子对的存在进一步证明了 C<sub>60</sub>分子在样品表面沿[110]方向的流动性.



[110] [110] 80 nm × 80 nm

图 1 C<sub>60</sub>分子为 1ML 时的 STM 图像



[110] [110] 80 nm × 80 nm

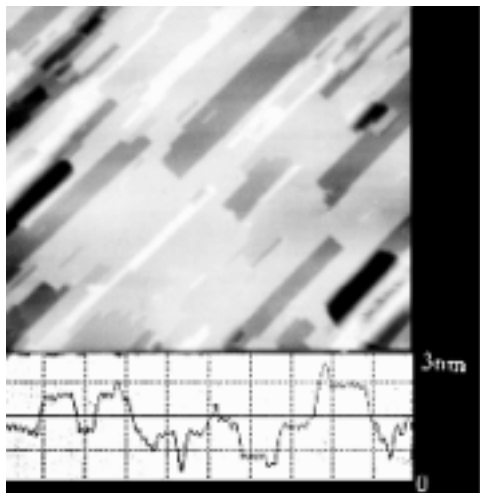
图 2 C<sub>60</sub>分子为 2ML 时的 STM 图像

继续增加 C<sub>60</sub>的覆盖度,C<sub>60</sub>分子对的数量随覆盖度而增加.当覆盖度达到 1ML 时,表面绝大部分 C<sub>60</sub>分子都形成了分子对(见图 1 中的左下角小插图);同时,大范围形貌显示了沿[110]方向均匀的 C<sub>60</sub>分子链结构(见图 1),分子链的间距为(1.62 ± 0.04) nm,这与衬底在[110]方向的周期一致(1.6 nm).

由于 C<sub>60</sub>分子对中两分子的间距为 0.98 nm,这个距离比 Adams 等<sup>[15]</sup>估计的 C<sub>60</sub>分子间产生化学键的间距要大 0.08 nm.因此可以预计,分子对形成的原因是 C<sub>60</sub>分子间的范德瓦尔斯力和 C<sub>60</sub>分子与表面原子间的相互作用力共同作用的结果,换言之,就是这两种作用力处于一种微妙的平衡状态.

在[110]方向上,没有明显的证据表明第一层的 C<sub>60</sub>分子在该方向的相互作用影响了分子在该方向的排列.

**2. C<sub>60</sub>分子的多层生长** 进一步增加 C<sub>60</sub>的覆盖度至约 2ML,第二层 C<sub>60</sub>分子形成了有序的结构(见图 2).该层的 C<sub>60</sub>分子吸附在下层两行 C<sub>60</sub>分子链之间,也形成了间距为 1.6 nm 沿[110]方向的分子行.与第一层分子排列不同的是,每行中 C<sub>60</sub>分子的间距均为(1.13 ± 0.04) nm,在表面形成了大小为 1.6 nm × 1.12 nm 的原胞.从图 2 中可以看到第二层 C<sub>60</sub>分子也继承了衬底在[110]方向的间隔,换言之,第一层分子的存在没有消除衬底在[110]方向对 C<sub>60</sub>薄膜生长的影响.同时,STM 图像还展示了在第二层生长完成前,没有出现第三层生长.进一步的实验表明:我们无法得到完整的第二层,即第二层上始终存在着相当数量的缺陷,而使得有序区域的平均大小约为 10 nm.



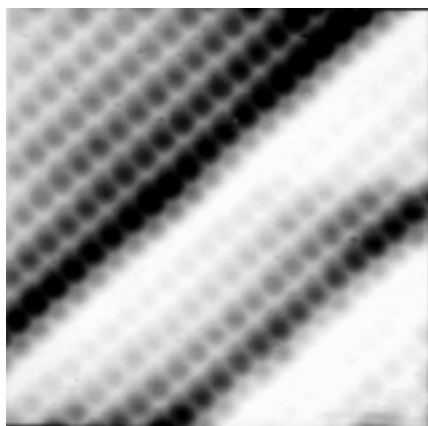
[110] [110] 160 nm × 160 nm

图 3 C<sub>60</sub>分子约为 9ML 时的 STM 图像

示出六角密堆(hcp)结构(见图 4(a)),其表面层为 hcp( $\bar{1}100$ )面;而下层分子的结构则为面心立方(fcc),各层为 fcc(110)面(见图 5)。

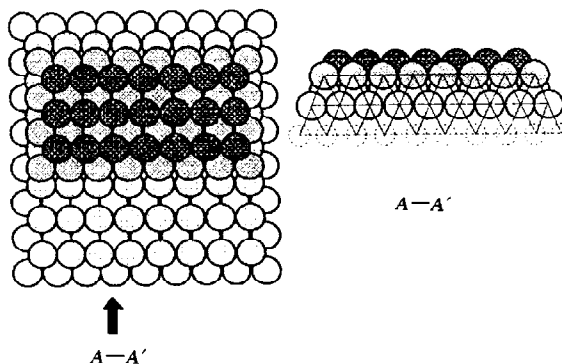
继续 C<sub>60</sub>的沉积,薄膜从第三层起开始了层状生长,然而 C<sub>60</sub>薄膜的这种层状生长是一种非理想的层状生长.值得注意的是:从第三层开始,薄膜采用了双层生长,即表面的台阶都由双分子层构成.图 3 是生长约 9 ML 的 C<sub>60</sub>薄膜的 STM 图像,从线性扫描图(线扫描位置为图 3 中的横线)中可以看到大部分生长岛与下一层表面的间距为两个分子层.再继续增加 C<sub>60</sub>的覆盖度至 15 和 20ML,STM 图像显示,各覆盖度下的表面形貌没有明显的不同.测量结果表明,所有表面的原胞大小都为 1.12 nm × 1.61 nm.

对 C<sub>60</sub>分子薄膜的侧面(facet)的观测发现:在靠近膜面处的几层分子的结构展示



[110] [110] 16 nm × 16 nm

(a)C<sub>60</sub>薄膜表面的 hcp 结构



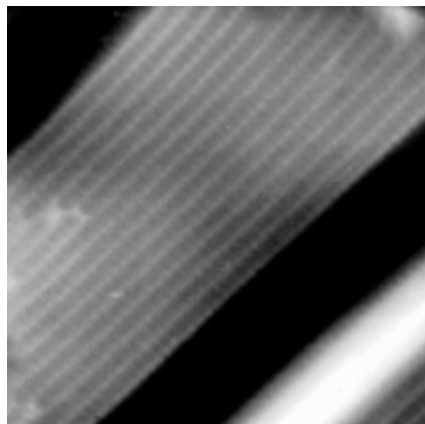
(b)hcp 结构的模型图

图 4

对两种结构面间距的测量结果是, fcc(110)的面间距为 0.59 nm, hcp( $\bar{1}100$ )双层面间距为 0.95 nm. 通过对测量参数进行计算可以得到,对于面心立方结构其晶格常数为 1.60 nm,最近邻距离为 1.12 nm. 与 C<sub>60</sub>晶体的晶格常数 1.417 nm 比较发现, C<sub>60</sub>薄膜的晶格常数增大了 13%. 对六角密堆结构其基平面(0001)的晶格常数为 1.12 nm,在[0001]方向的晶格常数为 1.61 nm,这表明该 hcp 结构不是理想的 hcp. 进一步的计算表明,在该 hcp 的

[0001] 方向, 各密排面间的  $C_{60}$  分子的最邻近距离是  $1.02 \text{ nm}$ , 与  $C_{60}$  晶体的晶格常数几乎相等.

由于  $C_{60}$  分子间的相互作用是范德瓦尔斯力, 不存在着悬挂键, 那么是什么因素导致  $C_{60}$  薄膜在表层和下层采取了不同的密排结构呢? 理论计算表明,  $C_{60}$  分子形成面心立方后总能量比形成六角密堆要低约  $4 \text{ kJ/mol}$ <sup>[16]</sup>, 因此从能量角度来说面心立方比六角密堆结构要稳定. 然而, 实验结果表明  $C_{60}$  晶体为面心立方结构; 而  $C_{60}$  和  $C_{70}$  (9:1) 的混合粉末晶体则表现为六角密堆, 但其分子的最近邻距离与面心立方一致, 并且在  $c$  轴方向其晶格常数为  $1.636 \text{ nm}$ <sup>[17]</sup>. 由于  $C_{60}$  分子与  $C_{70}$  分子之间没有化学键存在而只是范德瓦尔斯力, 同时  $C_{70}$  分子比  $C_{60}$



[110] [1 $\bar{1}$ 0]  $22 \text{ nm} \times 22 \text{ nm}$

图 5  $C_{60}$  薄膜侧面所展示的 fcc 结构

分子大, 所以  $C_{70}$  分子的存在会引起  $C_{70}$  分子周围晶格产生应变. 这就表明, 当晶格中存在应变时,  $C_{60}$  薄膜有可能表现出 hcp 结构.

由于沉积速率很低(约  $2 \text{ ML/h}$ ), 则整个沉积过程是处于准平衡状态, 因此, 这种双层生长岛应当是在生长过程中就已经形成. 从图 3 中还可以看到, 表面的小生长岛也是由双层分子组成, 这些生长岛的形状细长. 由于  $C_{60}$  分子的沉积位置是随机的, 因而沉积直接落在岛上的分子数目将是很少的; 这表明, 这些生长岛上的第二层分子的大部分是从下层表面“爬”上来的. 对薄膜表面处于生长初期的单分子链的观察发现, 这时的  $C_{60}$  分子是占据着下层四个分子间的中心空位; 当生长岛具有一定大小后(约 3 个分子链行), 将形成双层的 hcp 结构, 这时第一层的分子将占据下层分子垂直于分子链方向的桥位 (bridge site), 而第二层分子则占据第一层分子的中心空位.

根据以上的实验现象和分析, 我们对形成 hcp 结构的原因进行了如下分析: 在表面原胞的大小始终为  $1.62 \text{ nm} \times 1.12 \text{ nm}$  的条件下,  $C_{60}$  分子为了尽可能保持  $1.02 \text{ nm}$  的最邻近距离和密堆结构以使总能量最低, 而采取了非理想的 hcp 结构. 在这个结构中, A, B 密堆面分子间的最邻近距离为  $1.02 \text{ nm}$ .

下面进一步讨论薄膜中出现两种不同密堆结构的原因.

从 STM 图像中已经看到 hcp 只出现在薄膜的顶层, 下层则都是 fcc 结构; 而对晶格常数的测量和计算表明顶层的 hcp 是在 [0001] 方向被压缩了的, 因而在该晶格中存在着应变和相应的应变能. 随着沉积过程的继续, 晶体厚度逐渐增加, 也导致了 hcp 晶体内应变能的积累. 当总应变能的大小超过某个临界值时, 晶体内分子间的弱范德瓦尔斯力将不足以继续维持晶体的 hcp 结构, 而发生 hcp  $\rightarrow$  fcc 的结构相变以释放晶体内多余的应变能. 因此, 薄膜下层分子的结构表现出了面心立方. 值得进一步指出的是: 这个结构相变是可逆的. 如果对样品进行退火, 使薄膜表层的  $C_{60}$  分子解附; 这时 STM 图像虽然显示出样品表面生长岛的形状发生了明显的改变, 但表面层的结构仍是 hcp.

Gu 等<sup>[18]</sup>在对 III-V 族薄膜外延生长动力学的理论研究中, 得出了以下结论: 在薄膜

生长中,由于各层原子间的相互作用而使得薄膜顶部两层原子的结构与下层的结构不同.随着薄膜表面新一层原子的生长,原来的第二层原子(现在的第三层)的结构将发生转变,而变成下层的结构.他们的结论与我们在  $C_{60}/GaAs(001)2 \times 4-\beta$  生长系统中所观察到的实验现象是一致的.

### 3.2 $C_{60}$ 薄膜在 $GaAs(001)-c(4 \times 4)$ 相上的外延生长

首先在  $c(4 \times 4)$  相衬底上沉积约 0.02ML 的  $C_{60}$  分子,从 STM 图像中可以看到,所有的  $C_{60}$  分子都吸附在表面台阶边沿和缺陷处,这表明在室温下的  $C_{60}$  分子在  $c(4 \times 4)$  表面具有很好的迁移性.考虑到  $c(4 \times 4)$  表面的平台宽度超过 40 nm,因此  $C_{60}$  分子在遇到台阶或缺陷前平均要迁移 20 nm 以上的距离.这表明,  $C_{60}$  分子在完整的  $c(4 \times 4)$  表面自由迁移的距离的下限为 20 nm.如此高的流动性也表明了  $C_{60}$  分子与衬底间的相互作用仍为弱的范德瓦尔斯力,这一点与  $C_{60}$  分子吸附在  $GaAs(110)$  和  $GaAs(001)2 \times 4-\beta$  相表面的结果类似.仔细检查  $C_{60}$  分子在台阶处的吸附位置可以看到,与在金属和  $GaAs(110)$  衬底不同,这时的  $C_{60}$  分子是吸附在上升台阶边沿.对 STM 图像的进一步检查还发现几乎没有  $C_{60}$  分子吸附在衬底表面的岛上,这暗示了沉积在岛上的  $C_{60}$  分子在迁移中能够很容易地跨下台阶.这个现象表明,在  $c(4 \times 4)$  相的台阶处不存在着一个有效的势垒以阻止  $C_{60}$  分子向下的迁移,即如果不考虑几何势垒,那么  $C_{60}$  分子将在  $c(4 \times 4)$  表面自由迁移.

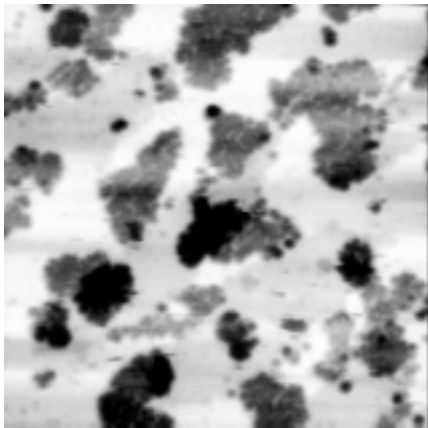


图 6  $C_{60}$  分子为 0.3ML 时的 STM 图像

随着在衬底表面覆盖度的增加,  $C_{60}$  分子并没有象在金属或  $GaAs(110)$  表面那样首先完全覆盖台阶,然后再从台阶向平台中央生长<sup>[4]</sup>;而是在台阶被覆盖之前,从它们各自的形核位置开始生长.图 6 是覆盖度约为 0.3ML 的大范围的 STM 图像,从中可以看到,这时虽然  $C_{60}$  的生长已经开始,但仍有许多台阶并没有被覆盖.这个结果不仅表明了  $C_{60}$  分子间的相互作用比  $C_{60}$  分子与衬底间的相互作用要强,而且进一步证明了前面的结论:  $c(4 \times 4)$  相的台阶在  $C_{60}$  分子生长中的作用仅仅是在扩散中的一个几何势垒,并没有对  $C_{60}$  的形核和生长过程产生有意义的影响.从相互作用的角度说,  $C_{60}$  分子与台阶之间的相互作用远弱于  $C_{60}$  分子间的相互作用.这与  $C_{60}$  分子

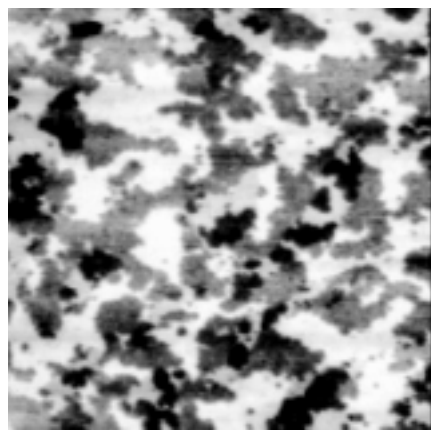
与金属和  $GaAs(110)$  衬底的台阶之间强的相互作用成为鲜明的对比.

从图 6 的高分辨图中可以看到第一层的单个生长岛仅仅表现出局域有序的六角密排结构.测量表明分子间的最邻近距离为  $(1.05 \pm 0.04)$  nm,该距离与  $C_{60}$  晶体的最邻近距离一致,这预示了  $C_{60}$  分子将按  $fcc(111)$  面生长.

逐渐增加覆盖度至约为 0.7ML, STM 图像展示了  $C_{60}$  分子在没有完成第一层生长前,就已经开始了第二层的生长(见图 7),这是一个典型的三维生长.据我们所知,这是首

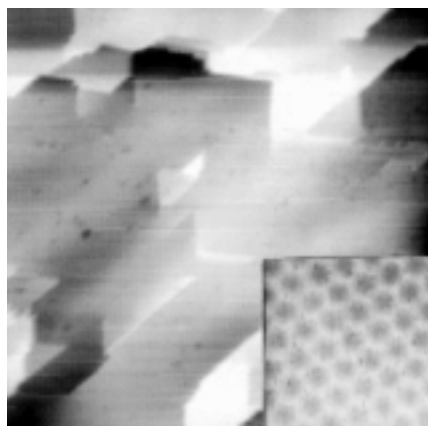
次在超高真空中观察到室温下  $C_{60}$  分子在衬底表面的生长呈现三维生长模式 (Volmer-Weber 生长)。

为了进一步了解  $C_{60}$  分子与衬底表面的相互作用情况, 对样品在不同温度下进行退火, 直到  $C_{60}$  分子开始从表面解附。在对金属衬底的研究中, 退火使得单层  $C_{60}$  薄膜变得更加平整和完全有序<sup>[8]</sup>。然而, 对于  $c(4 \times 4)$  样品的表面形貌和生长岛的局域有序结构并没有因为退火而出现有意义的变化或改善。退火后三维生长岛依然存在的事实进一步证实了前面的结论:  $C_{60}$  分子间的相互作用要比  $C_{60}$  分子与衬底间的相互作用强。



[110] [110] 120 nm × 120 nm

图 7  $C_{60}$  分子为 0.7 ML 时的 STM 图像



[110] [110] 80 nm × 80 nm

图 8  $C_{60}$  薄膜多层生长后的 STM 图像

随着进一步的长时间沉积,  $C_{60}$  分子形成了多层 (8—9 个分子层) 生长岛, 岛的平均尺寸约 50 nm, 岛顶层的结构展示了有序的六角密堆 (见图 8 中的插图)。图 8 是在 230°C 退火 1h 后生长岛表面的典型 STM 图像, 它显示了平整的、大面积有序的平台。图 8 中的生长岛边缘的取向表现出沿分子密堆方向的直线, 以满足边缘自由能最低的要求。

另外, 还测得生长岛 fcc(111) 表面的最邻近距离为 1.03 nm, 这个值与  $C_{60}$  在金属和 Si 衬底上的值一致。

## 4 结 论

我们已经对  $C_{60}$  分子在 GaAs(001)  $2 \times 4$ - $\beta$  相和  $c(4 \times 4)$  相的薄膜生长进行了系统的研究。虽然这两种表面只是同一种材料的两种不同重构的表面, 而且  $C_{60}$  分子与表面间的相互作用都为范德瓦尔斯力, 但是  $C_{60}$  分子在它们上的形核、生长过程和结构表现出了完全不同的不同。在 GaAs(001)  $2 \times 4$ - $\beta$  衬底上,  $C_{60}$  薄膜采用了非密堆面进行生长, 并且在生长过程中有结构相变产生。在  $c(4 \times 4)$  表面,  $C_{60}$  薄膜的生长呈现出三维生长模式, 而非 S-K 模式。

- [1] Y. Kuk *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **70**(1993), 1948.
- [2] L. D. Lamb *et al.*, *Science*, **255**(1992), 1413.
- [3] E. I. Altman and R. J. Colton, *Phys. Rev.*, **B48**(1993), 18244.
- [4] Y. Z. Li *et al.*, *Science*, **252**(1991), 547; *Science*, **253** (1991), 249.
- [5] X. D. Wang *et al.*, *Phys. Rev.*, **B47**(1993), 15923.
- [6] T. Hashizume *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **31**(1992), L880.
- [7] Hang Xu *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **70**(1993), 1850.
- [8] T. Hashizume *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **71**(1993), 2959.
- [9] C. Joachim *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **74**(1995), 2102.
- [10] E. I. Altman and R. J. Colton, *Surf. Sci.*, **279**(1992), 49.
- [11] Y. Z. Li *et al.*, *Phys. Rev.*, **B45** (1992), 13837.
- [12] T. Hashizume *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **32**(1993), L132.
- [13] J. L. Wragg *et al.*, *Nature*, **348**(1990), 623.
- [14] H. Shinohara *et al.*, *Rapid Commun. Mass Spectrum.*, **6**(1992), 413.
- [15] G. B. Adams *et al.*, *Phys. Rev.*, **B50**(1995), 17471.
- [16] S. Saito and A. Ostiyama, *Phys. Rev. Lett.*, **66**(1991), 2637.
- [17] W. Kratschmer *et al.*, *Nature*, **347**(1990), 354.
- [18] B. L. Gu *et al.*, *Phys. Rev.*, **B51**(1995), 7104.

## STUDY ON GROWTH OF C<sub>60</sub> MOLECULES ON GaAs(001) SUBSTRATE BY SCANNING TUNNELING MICROSCOPY

LING YONG<sup>1),2)</sup> XUE QI-KUN<sup>2)</sup> CHEN HAO-MING<sup>1)</sup> T. SAKURAI<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup>(Department of Modern Applied Physics, Tsinghua University, Beijing 100084)

<sup>2)</sup>(Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980, Japan)

(Received 19 July 1996)

### ABSTRACT

We have studied the growth of C<sub>60</sub> film on GaAs(001) 2 × 4-β phase surface epitaxially grown by MBE. Due to the delicate equilibrium between the interaction of C<sub>60</sub> molecules and the interaction of C<sub>60</sub> molecule with the substrate, the top layer of C<sub>60</sub> film, unlike that on the metal and silicon substrate, shows a non-close packed structure. The facet structure of C<sub>60</sub> film exhibits that the top-two layers are hcp but the others are fcc, which implies an existence of the phase-transition from hcp to fcc structure in the film growth. The measurement results that the lattice constant of fcc is 1.13 nm, larger of 13% than that of C<sub>60</sub> crystal, and hcp is not ideal which is compressed along c-axis. The strain in C<sub>60</sub> film and the minimum of the total energy should be responsible for the existence of the phase-transition. On GaAs(001)-c(4 × 4) surface, the structure of C<sub>60</sub> film shows fcc(111) surface and the film grows in three-dimensional mode which is quite different from that on other substrates.

PACC: 6116P; 6855; 6160; 7280E