

重审运动学低能电子衍射方法和 Si(001)2×1结构

赵汝光 杨威生

(北京大学物理系)

1985年5月5日收到

本文通过将 KLEED/OED 方法应用于重构很深,很复杂的表面结构 Si(001) 2 × 1 的许多结构模型,探讨了此方法在解决复杂表面结构上的潜力。得出的结论是肯定的。

一、引言

表面物理的重要性以及表面原子结构的了解对表面物理发展的意义都是十分明显的。为了解决各种表面结构,人们已经和正在付出昂贵的代价^[1-5],但得到的肯定的东西却很少^[6]。

至今已尝试过的研究表面结构的各种方法中^[1],低能电子衍射方法(LEED)几乎是最早发展起来的,最简单便宜的,理论上和实验上都十分成熟^[7,8]。原则上讲,它可以提供的表面原子结构信息最为充分^[7],并且十分可信^[9]。但由于考虑到多次散射的 LEED 动力学强度计算十分费时间,以至于在较复杂的表面结构面前,动力学 LEED 几乎只能起到否定不正确的模型的作用^[10]。而在复杂结构如 Si(111)($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-Ag 和 Si(111)7×7 等面前,连否定的作用也不能起了。

另一方面,早在 1971 年 Lagally, Ngoc 和 Webb 等人就提出了用数据平均来消除 LEED 实验曲线中的多次散射影响的方法,即 CMTA 方法^[11]。由于这个方法还没有理论上的确切的依据^[7],所以多年来虽然断断续续有人在用它做些工作^[12-14],但对这个方法究竟是否还有潜力注意不够。最近我们用这个方法提取出了 Si(111)7×7 表面的一些很有意思的结构信息^[15],引起我们对进一步发掘这个方法的潜力的兴趣。由于对 Si(001) 2 × 1 表面结构已作过大量研究^[16-19,6],而且又可找到这个表面的已经发表的低能电子衍射 CMTA 实验曲线^[12],这个表面自然成了检验此方法的最好候选者。

本工作计算了一些已发表的关于 Si(001) 2 × 1 的表面结构模型^[16-20]的运动学低能电子衍射强度曲线(KLEED),并与 White 和 Woodruff^[12]的 CMTA 实验曲线比较。结果说明 CMTA 方法的确能很好地消除实验曲线上多次散射的贡献而保留单次散射的贡献;结果还表明 KLEED 能提供足够的信息量和有很高的灵敏度来判断一个很复杂的模型的好坏。但和全动力学计算比起来,KLEED 计算的计算量简直是微不足道的。所以,将 KLEED 计算和 CMTA 实验曲线配合的方法在解决复杂表面结构面前具有很大的潜力,

值得进一步开发。

二、方法和结果

由于 CMTA 方法可以大大消除实验曲线上多次散射的影响^[11-15], 和以往的许多工作^[11-15]一样, 我们计算的也是模型的运动学强度曲线。除此之外, 考虑到 CMTA 曲线本身就是从大量在不同散射角度下的衍射曲线平均而来, 所以和我们关于 Si (111) 7×7 的工作^[15]一样, 也假设原子的散射因子是球对称的(即与散射角无关的)常数。另外, 将所有导致衍射强度随能量增大而缓慢衰减的因素(包括原子散射因子的变化, 热运动的影响等等)用一个与能量有关的衰减因子来统一描写^[13]。对非弹性散射的影响则用一个随能量而增大的入射电子平均自由程来描写^[12]。于是, 为了和实验曲线^[12]比较, 我们只需计算模型的相干函数^[13], 其定义为:

$$I(\mathbf{S}) = \left| \sum_{kj} a_k(K_0) \exp(i\mathbf{S} \cdot \mathbf{R}_{kj}) \right|^2,$$

其中 $\mathbf{S} = \mathbf{K} - \mathbf{K}_0$, \mathbf{K}_0 和 \mathbf{K} 分别为入射和衍射束的波矢, \mathbf{R}_{kj} 为第 k 层的第 j 个原子的位置矢量, $a_k(K_0) = D(K_0) \exp(-Z_k/\Lambda(K_0))$ 是第 k 层的原子对衍射束的相对振幅的贡献, Z_k 是第 k 层原子离表面的垂直距离, $D(K_0) = K_0^{-\alpha}$ 是反映强度缓慢衰减的衰减因子, α 为待定非结构参数, $\Lambda(K_0) = \beta K_0^r$ 是入射电子平均自由程, β 和 r 为待定非结构参数。

在合理的 α 、 β 和 r 值下, 即 Λ 在几个 Å 的情形下, 第 20 层的原子对衍射束的贡献, 即 a_{20} , 完全可以忽略不计。所以我们的所有模型都是由 20 个单原子层构成的, 其中最上面的五层可有平行于和垂直于表面的重构位移, 第六、七、八层只有垂直于表面的重构位移。为使计算曲线与实验曲线有基本相同的峰宽和合理的体峰与重构峰强度比, 经过筛选, 对所有的模型我们都取

$$\alpha = 0.95, \beta = 1.40, r = 0.45.$$

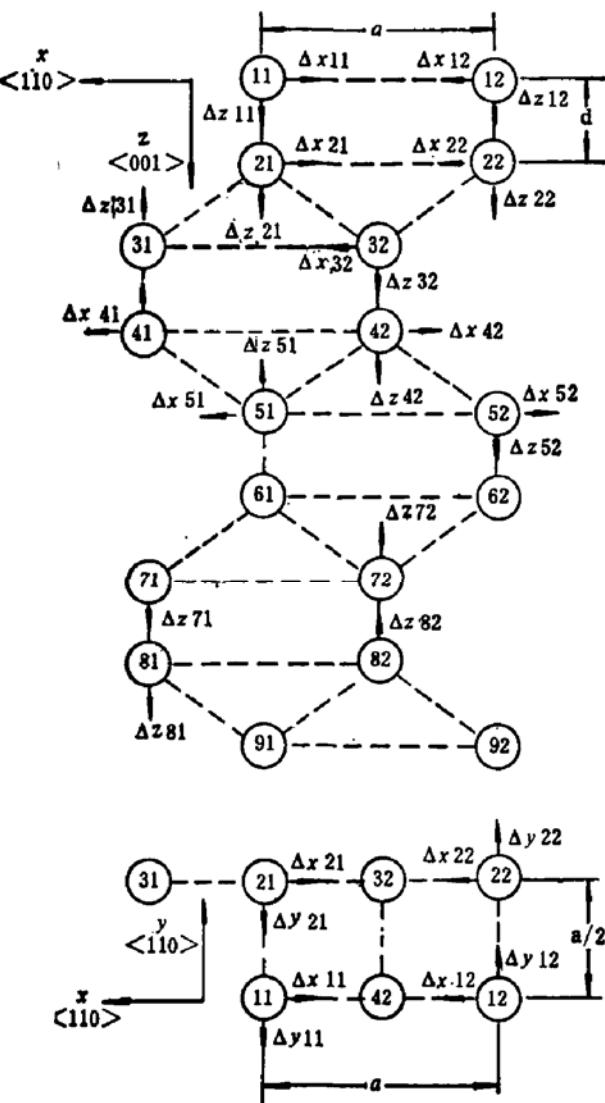


图 1 各结构参数的定义

些关于 Si (001) 2×1 表面结构的模型^[16-20]。各模型的结构参数见表 1, 各结构参数的定义见图 1。各模型的一切可能的瞬的强度平均^[18]计算曲线及相应的实验曲线见图 2。由

表 1 各模型结构参数

	ZY	YJM2 ^[19]	YJM1 ^[18]	Ch ^[16]	YC ^[17]	HDP ^[20]
△X11	-0.720	-0.720	-0.650	-0.487	-0.573	-0.500
△Y11	-0.430	-0.210	-0.300	-	-	-
△Z11	0.009	0.060	0.045	-0.100	0.159	0.250
△X12	1.100	0.720	0.750	1.071	1.038	0.900
△Y12	0.430	0.230	0.300	-	-	-
△Z12	0.589	0.470	0.445	0.460	0.469	0.614
△X21	-0.200	-0.190	-0.060	-0.094	-0.093	-0.094
△Y21	-0.430	-0.210	-0.100	-	-	-
△Z21	0.041	0.030	0.135	-0.076	0.648	0.022
△X22	0.200	0.210	0.120	0.094	0.115	0.105
△Y22	0.430	0.230	0.100	-	-	-
△Z22	0.041	0.030	0.135	0.011	-0.020	-0.056
△X31	0.000	0.000	0.000	-0.031	0.084	0.002
△Z31	-0.223	-0.150	-0.152	-0.132	-0.129	-0.130
△X32	0.050	0.000	0.000	0.025	0.007	0.016
△Z32	0.257	0.230	0.208	0.106	0.185	0.146
△X41	0.100	0.000	0.000	0.004	0.060	0.032
△Z41	-0.156	-0.130	-0.100	-0.096	-0.103	-0.100
△X42	0.000	0.000	0.000	0.010	-0.061	-0.026
△Z42	0.104	0.130	0.100	0.088	0.135	0.112
△X51	0.130					
△Z51	-0.007					
△X52	-0.130					
△Z52	0.007					
△Z61	0.000					
△Z62	0.000					
△Z71	0.060					
△Z72	-0.060					
△Z81	0.010					
△Z82	-0.010					

于 White 和 Woodruff 只发表了 00、10、11、 $\frac{1}{2}0$ 、和 $1\frac{1}{2}$ 五条实验曲线^[12]，我们也只计算了相应的五条曲线。

此外，由于我们的计算是十分快速和便宜的，再配合正交设计（OED）^[21]，使我们能在大范围内筛选模型，以便得到更好的计算曲线与实验曲线的符合。至今我们找到的符合最好的模型 ZY 的参数亦见表 1，曲线见图 3。这个模型的全部键长改变（相对于体内值）都不大于 3.3%，从物理上看是合理的。

三、讨 论

1. 尽管模型 Ch^[16]、YC^[17]、YJM1^[18]、YJM2^[19] 和 HDP^[20] 基本上是属于同一类型的，差别主要在于具体数值（YJM1 和 YJM2 模型还有 Y 方向的位移），但从图 2 可以看出它们的 KLEED 曲线的差异是十分显著的。这说明 KLEED 对结构有足够的灵敏度。

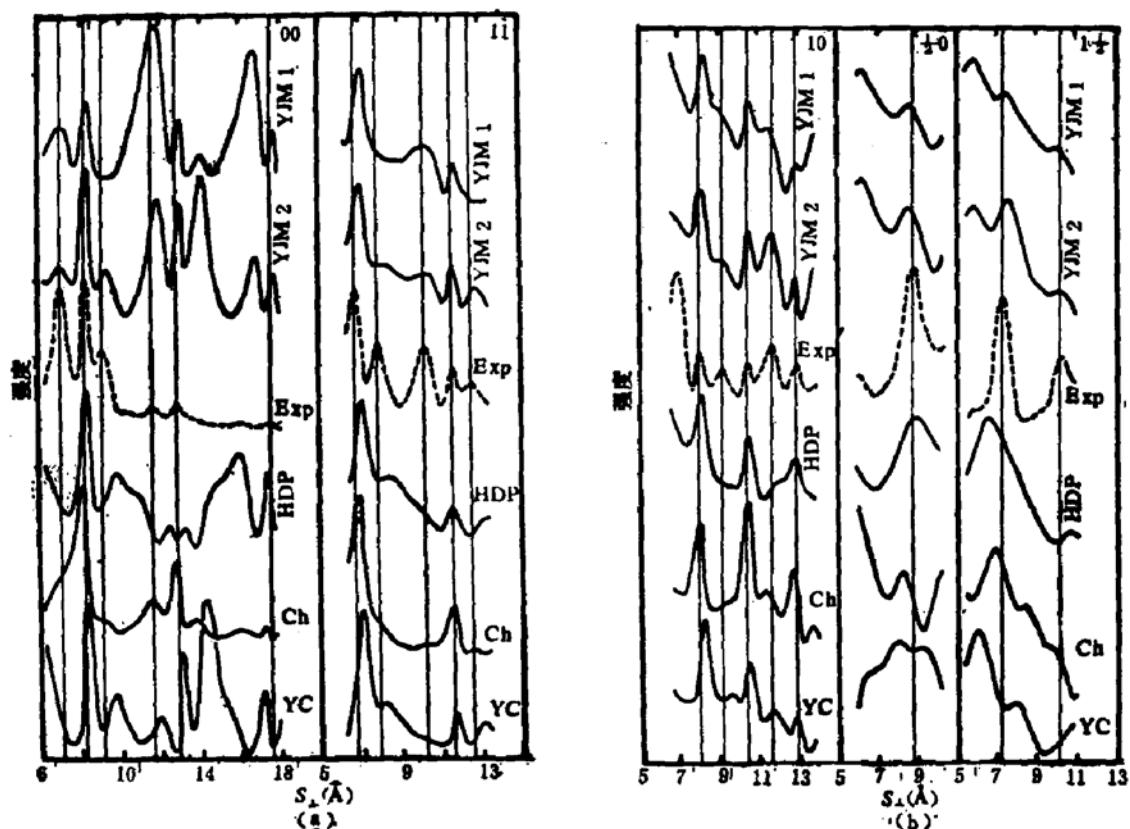


图 2 Si(001) 2×1 表面的低能电子衍射强度和 S_{\perp} (波矢变化在表面法线方向的分量) 的关系
虚线为 CMTA 实验曲线^[12], 实线为各模型的 KLEED 计算曲线。YJM1 模型见 [18], YJM2 模型见 [19], Ch 模型见 [16], YC 模型见 [17], HDP 模型见 [20]. (a) 00 和 11 衍射束,

(b) $10, \frac{1}{2} 0$ 和 $1 \frac{1}{2}$ 束

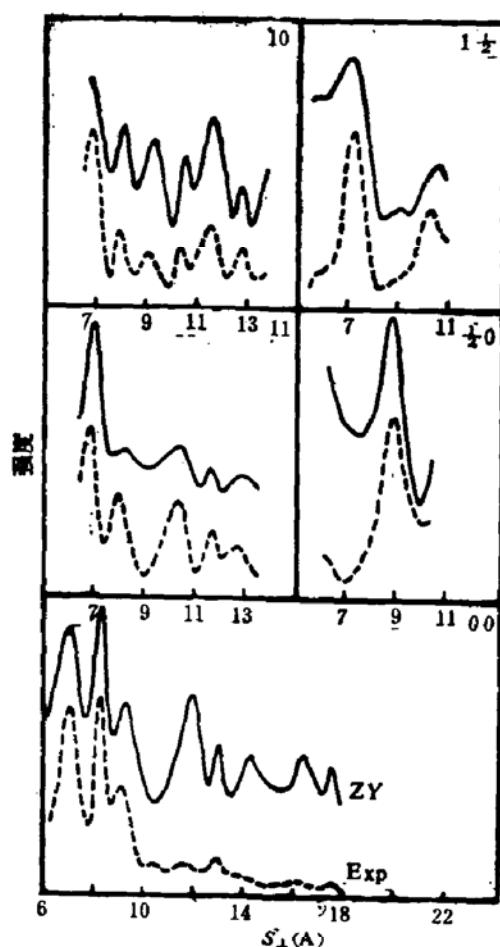


图 3 和图 2 相同的曲线
虚线同图 2 中的虚线, 实线是 ZY 模型的 KLEED 计算曲线

并包含足够的信息量。

2. 用眼睛比较图 2 中的曲线就可以明显地看出 YJM 2 模型优于其它各模型。这和动力学 LEED 分析的结论是一致的^[18,19]。但两种方法所花费的代价的差别却是 APPLE II 的几分钟对 IBM 大型计算机的几小时。何况在我们的 KLEED 计算中有些模型(如 ZY 模型)包含的 2×1 重构深达八层。这对动力学计算是可能的(至少在目前)。

3. YJM 2 模型的计算曲线与实验曲线的符合仍不够理想,这说明模型仍有待进一步改进。但可以看出所有的峰位基本上都是符合的,这说明 CMTA 的确能大大减小多次散射的贡献。

4. 从图 3 可以看出 ZY 模型和实验曲线的符合程度比过去已发表的所有模型都好多了。峰位和相对强度的符合都很好,而且键长也无不合理之处。这除了有力地证明实验曲线上没有多次散射贡献之外,还充分地显示了 KLEED 和 OED 结合起来的威力。当然,必需指出,和在动力学 LEED 中的情况一样:所依据的实验曲线越多,能量范围越大,则得出的模型越可靠。而 ZY 模型所依据的实验曲线只有五条,并且只有两条不长的分数束曲线,所以其可靠程度是不十分大的。我们希望指出的是:如果能收集更多的实验曲线,尤其是有更多更长的分数束曲线,那末,用 KLEED/OED 找出更好的模型是完全有希望的。

四、结 论

由上述事实和分析我们得出:

1. CMTA 方法的确可以很好地消除 LEED 强度曲线上多次散射的贡献,从而成为 KLEED/OED 方法的实验基础。
2. KLEED 有足够的结构灵敏度和信息量。与正交设计结合成 KLEED/OED 方法很有希望成为表面结构分析的有力手段。
3. 计算中采用的简化不仅能使计算大为简化,而且也是合理的。
4. Si(001) 2×1 的 YJM2^[19] 模型优于 YJM1^[18], Ch^[16], YC^[17], 和 HDP^[20] 等模型,但仍有待改进。

参 考 文 献

- [1] Proceedings of the 1st International Conference on the Structure of Surfaces, (1984).
- [2] G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber and E. Weibel, *Phys. Rev. Lett.*, **50**, 120(1983).
- [3] R. P. Tromp, E. J. van Loenen, M. Iwami and F. W. Saris, *Solid State Commun.*, **44**, 971(1982).
- [4] M. Aono, R. Souda, C. Oshima and Y. Ishizawa, *Phys. Rev. Lett.*, **51**, 801(1983).
- [5] K. Higashiyama, S. Kono, H. Sakurai and T. Sagawa, *Solid State Commun.*, **49**, 253(1984).
- [6] D. E. Eastman, *J. Vac. Sci. Technol.*, **17**, 492(1980); D. Haneman, *Adv. Phys.*, **31**, 165(1982).
- [7] J. B. Pendry, *Low Energy Electron Diffraction*, Academic Press, London and New York (1974).
- [8] F. Jona, J. Strozier Jr. and W. S. Yang, *Rep. Prog. Phys.*, **45**, 527(1982).
- [9] J. R. Noonan and H. L. Davis, *Proceedings of the ICSOS-1*, (1984).
- [10] H. Liu, M. R. Cook, F. Jona and P. M. Marcus, *Phys. Rev.*, **B28**, 6137(1983).
- [11] M. G. Lagally, T. C. Ngoc and M. B. Webb, *Phys. Rev. Lett.*, **26**, 1557(1971).
- [12] S. J. White and D. P. Woodruff, *Surf. Sci.*, **64**, 31(1977).

- [13] T. D. Poppendieck, T. C. Ngoc, and M. B. Webb, *Surf. Sci.*, **75**, 287(1978).
- [14] Y. Terada, T. Yoshizuka, K. Oura, and T. Hanawa, *Surf. Sci.*, **114**, 65(1982).
- [15] W. S. Yang and R. G. Zhao, *Phys. Rev.*, **B30**, 6016(1984).
- [16] D. J. Chadi, *Phys. Rev. Lett.*, **43**, 43(1979) and unpublished.
- [17] M. T. Yin and M. L. Cohen, *Phys. Rev.*, **B24**, 2303(1981).
- [18] W. S. Yang, F. Jona, and P. M. Marcus, *Phys. Rev.*, **B28**, 2049(1983).
- [19] Y. S. Su, W. S. Yang, F. Jona and P. M. Marcus, Proceedings of the ICSOS-1, (1984).
- [20] B. W. Holland, C. B. Duck, and A. Paton, Proceedings of the ICSOS-1, (1984).
- [21] W. S. Yang, F. Jona and P. M. Marcus, *J. Vac. Sci. Technol.*, **B1**, 718(1983).
- [22] J. E. Demuth, P. M. Marcus, and D. W. Jepsen, *Phys. Rev.*, **B11**, 1460(1975).

Potential of Kinematic LEED and the Si(001)2×1 Revisited

Zhao Ruguan (R. G. Zhao) and Yang Weisheng (W. S. Yang)

(Department of Physics, Beijing University)

Abstract

In the present work, we compare KLEED calculation of the Chadi model, Yin and Cohen model, Holland, Duck and Paton model, Yang, Jona, and Marcus model, as well as the Su, Yang, Jona and Marcus model with the White and Woodruff CMTA experimental curves. The comparison shows that the last model is the best one. This is consistent with the conclusion of the full dynamic calculations. Moreover, the results indicate that CMTA can indeed eliminate the multiple scattering and that KLEED calculation, which is much faster than full dynamic calculation, contains enough structural information, thus having a great potential in solving complicated surface structures such as Si (001)c(4×2), Si(111) ($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30°-Ag or even Si(111)7×7. This work is under way.