

研究简报

氢在金刚石(100)表面的化学吸附

陆泳 蒋平

(复旦大学物理系 上海, 200433)

1991年6月5日收到, 9月16日修改定稿

采用集团模型以自洽的 EHT 方法计算了氢原子在金刚石(100)表面的吸附。结果表明, 氢的吸附位置倾向于处在顶位。电子态密度的分布与已有的实验结果相符。

PACC: 7320, 7120

近年来, 金刚石作为一种新型的半导体材料已引起人们越来越多的注意。金刚石难能可贵地兼具好的绝缘性和良导热性; 用金刚石制成的器件可耐高温和辐照。关于金刚石表面和界面性质的研究已有不少见诸报道, 但主要是针对金刚石(111)表面的实验观测和理论计算^[1,2]。本文对金刚石(100)表面吸附氢的原子和电子结构进行理论计算, 结果符合于 Glenn D. Kubiak 等人的实验观测^[3], 他们的研究表明天然金刚石(100)表面被氢吸附后形成稳定的(1×1)结构, 在费米能级以上 1.2—5.5 eV 之间未发现任何表面态。鉴于电荷密度自洽的 EHT 方法和集团模型^[3]在计算金刚石(111)表面氢吸附方面的肯定性作用^[2], 我们也采用这一方法对氢在金刚石(100)表面上的吸附进行研究, 得出氢稳定的吸附位置以及与之相应的电子态密度。有关参数与[2]中的相同, 即 Slater 轨道的 ζ 指数:

$$\text{H: } \zeta_s = 1.2000 \quad \text{C: } \zeta_s = 1.6083 \quad \zeta_p = 1.5679$$

中性原子的电离势:

$$\text{H: } I_s = 0.5000 \quad \text{C: } I_s = 0.6098 \quad I_p = 0.4139 \quad (\text{a. u.})$$

EHT 相互作用参数:

$$K_H = 1.20, \quad K_C = 1.75$$

迭代阻尼因子:

$$\alpha = 0.05$$

我们所选取的集团模型中一般包含 7 个碳原子, 以对应表面区二层原子, 集团边界用 10 个类碳原子^[3]加以饱和。分别考虑了四种氢原子可能的吸附位置, 即顶位; 两种过表面上相邻碳原子连线中点的法线上的位置, 其中一种在第二层内沿法线方向没有碳原子, 设为 A 位, 另一种在第二层有碳原子, 设为 B 位; 以及处于表面原胞中心法线上的位置。对每一种位置均计算体系的能量和氢与表面距离的关系。计算表明后两种位置未见能量曲线的极小值, 因而不可能为氢原子所吸附。A 位虽有能量极小值, 但相应的吸附能为 2.7 eV。顶位更为稳定, 吸附能为 4.5 eV, 相应的 C-H 键长为 0.98 Å。因此相信氢在金刚石的(100)表面倾向于顶位吸附。图 1 画出顶位吸附的位能曲线。

图 2(a) 是理想的清洁金刚石(100)表面的电子态密度, 图中取价带顶为能量零点。

图中表明禁带内存在空的表面态, 主要由表面原子的 p 轨道所贡献。图 2(b) 则为吸附氢形成 (1×1) 结构时的状态密度。可以看出图示结果和 G. D. Kubiak 等人费米能级以上 1.2—5.5 eV 间没有空的表面态的实验结果相当一致。

通过本文的计算, 结合 Kubiak 等人的实验观察, 基本上可以肯定低温下氢吸附于金刚石 (100) 表面形成稳定的 (1×1) 结构, 禁带中 E_F 以上有大于 4 eV 的能量范围内不存在空的表面态。应该指出, 本文中采取模型基于每个碳原子吸附一个氢原子这样的假定。理想的金刚石 (100) 表面碳原子具有两根倾斜的悬挂键, 如覆盖度达每个碳原子吸附两个氢原子时有可能出现非顶位的稳定吸附位置。进一步的工作应考虑每个碳原子吸附两个氢原子的可能性, 以便与具有相似的体结构的 Si (100) 表面吸附氢的情形^[4]作比较。

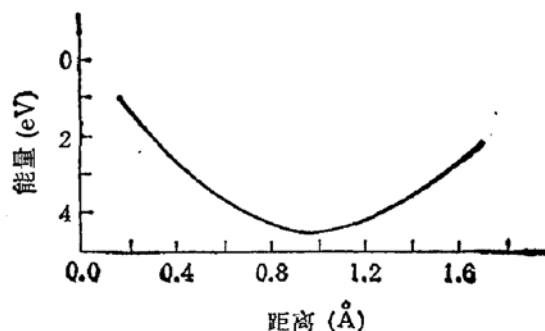


图 1 顶位吸附的位能曲线

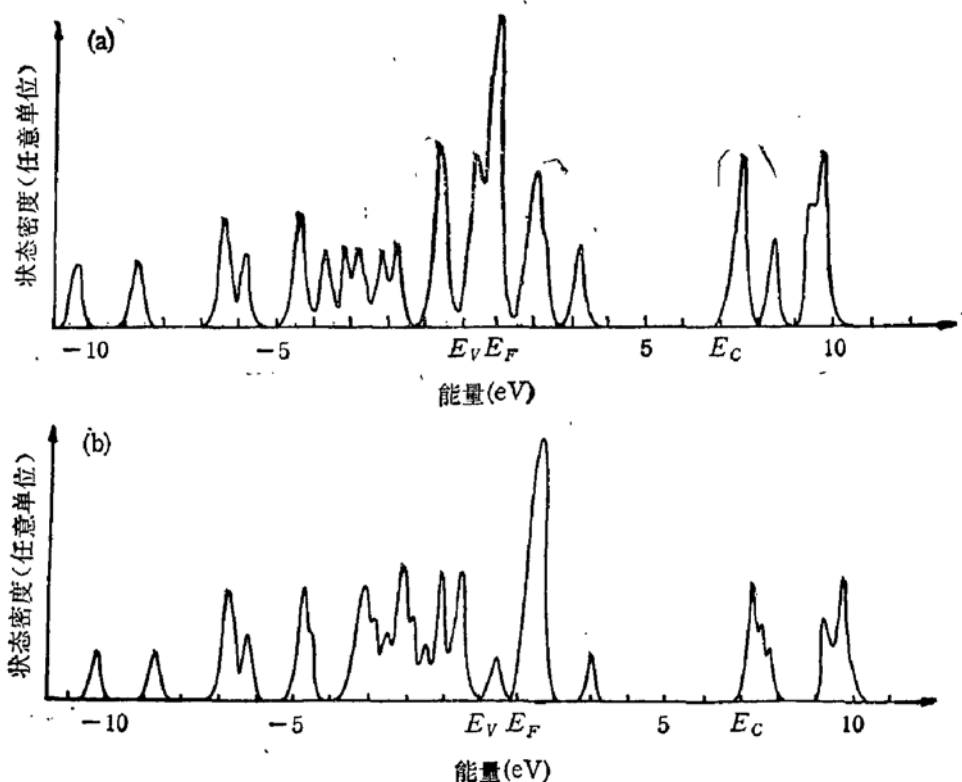


图 2

(a) 清洁表面 (b) 氢吸附表面

参 考 文 献

- [1] Glenn D. Kubiak, A. V. Hamza and R. H. Stulen, 私人通讯.
- [2] 徐丹东、叶令, 半导体学报, 10, 722(1989).
- [3] 张开明、叶令, 物理学报, 29, 1596(1980).
- [4] Y. J. Chabal and K. Raghavachari, Phys. Rev. Lett., 54, 1055 (1985).

Hydrogen Adsorption on Diamond (100) Surface

Lu Yong and Jiang Ping

(Department of Physics, Fudan University, Shanghai, 200433)

Abstract

Using the charge self-consistent EHMO calculation, the location of H chemisorbed on Diamond (100) surface has been determined to be on top position. It is shown that the bond length between H and C is about $1\text{\AA}$ while the adsorption energy is 4.5 eV. The calculated electronic density of states is in quite good agreement with the recent experimental results.