

研究快报

# 一种新的 KLEED/CMTA 方法 (III) ——适用于由不同种原子构成的表面\*

贾金峰 赵汝光 杨威生

(北京大学 物理学系, 北京, 100871)

1992年1月21日收到, 92年5月14日修改定稿

本文在运动学低能电子衍射 (KLEED) 计算方法中引入了一个平均复原子散射因子, 以期使这种 KLEED 方法能用于由不同种原子构成的表面, 而且还能大大节省计算时间。我们在多种表面上用动力学低能电子衍射 (DLEED) 计算对它进行了检验, 结果表明这种新的 KLEED 计算方法和 LEED 实验强度的 CMTA 平均方法相结合是一种十分简单、有效的表面结构分析方法。这一方法已被成功地应用于 Si(111)  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面结构研究。

**PACC:** 6820

## 一、引言

我们在最近的两篇文章<sup>[1,2]</sup>中提出了一种改进的 KLEED/CMTA 方法。在这一方法中我们对 Lagally 等人<sup>[3,4]</sup>提出的 KLEED/CMTA 方法进行了一系列的改进: 在获得 CMTA 实验曲线方面, 对入射条件进行了仔细安排, 使多次散射的影响得到最有效的消除; 在 KLEED 计算方面, 采用原子散射因子  $f(\theta, E) = 1$  等近似, 并引入了衰减因子  $\alpha$ 、入射电子的平均自由程  $\lambda_0$ 、增宽因子  $\omega$  等新参数, 使得改进后的 LEED 强度计算公式变为:

$$I(E) = \left| \sum_{k,i} \exp(-z_k/\lambda_0) \exp(i\mathbf{S} \cdot \mathbf{R}_{ki}) \right|^2 e^{-\alpha}. \quad (1)$$

增宽后:

$$I_s(E) = \sum_{n=-3}^3 C_n(\omega) \cdot I(E + n\delta E) / \sum_{n=-3}^3 C_n(\omega), \quad (2)$$

其中,  $C_n(\omega) = \frac{\omega^2}{\omega^2 + [S_\perp(E) - S_\perp(E + n\delta E)]^2}$ ,  $\delta E$  为相邻两计算点间的能量差。(1)

和 (2) 式中每项具体的含意及每个改进的原因在文章中已有详细说明<sup>[4]</sup>, 此处不再重复。对改进的 KLEED/CMTA 方法, 我们在 Cu(001)  $1 \times 1$  表面上进行了检验<sup>[4]</sup>, 并进一步

\* 国家自然科学基金资助项目。

将它用于确定  $\text{Si}(111)\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Al 的表面结构<sup>[1]</sup>。结果表明这一方法在由同种原子构成的表面上是十分成功的。

然而,由于在这一方法中,我们作了  $f(\theta, E) = 1$  的近似<sup>[1]</sup>,即将所有的原子都看成相同的,所以不能用于多种原子构成的表面 ( $\text{Si}(111)\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ -Al 是例外,因为虽然 Al 和 Si 的原子序数差 1,但即使在 DLEED 计算中二者也是不可区分的<sup>[2]</sup>)。另外,在我们的工作之前,人们曾尝试将 KLEED/CMTA 方法用于由两种或多种原子构成的表面<sup>[3-10]</sup>,但结果都不理想。当时人们把原因归为 CMTA 的结果不可靠。但在对这些工作所使用的由 Lagally 等人提出的 KLEED 计算方法<sup>[3,4]</sup>进行仔细分析后,我们发现 Lagally 等人在有效散射因子的推导过程中做了只有同种原子的假设<sup>[4]</sup>,因此他们的计算方法也不能应用于由两种或两种以上原子构成的表面。本工作的目的就是要改进我们的 KLEED 计算中对  $f(\theta, E)$  的处理,以期将 KLEED/CMTA 方法用于由两种及多种原子构成的表面。

在本文的第二部分我们首先阐明了 KLEED 计算方法中对原子散射因子的新处理方法。在第三部分对整个 KLEED/CMTA 方法,特别是对新的 KLEED 计算方法的适用性用 DLEED 计算做了仔细的检验。最后,对所引入的平均复散射因子及其应用的效果等进行了讨论。

## 二、对原子散射因子的新处理方法

电子被一个原子散射后,它的振幅和位相分别由这个原子的原子散射因子  $f(\theta, E)$  的模和辐角决定,电子经不同种的原子散射后有不同的振幅和位相。所以在 KLEED 计算中不论对原子散射因子作何处理,特别是对包含有不同种原子的系统,必须不使这两方面的信息丢失。但是,在 Lagally 等人所用的 KLEED 计算中<sup>[3,4]</sup>,只用了  $f(\theta, E)$  的模,而忽略了辐角对电子位相的影响,使得电子经两个不同种类的原子散射后的位相关系只由原子位置决定,而与原子种类无关。将这种计算方法用于由不同种原子构成的表面显然是不妥当的,我们在后面将进一步说明这一点。

考虑到 KLEED 计算结果总是和 CMTA 平均后的实验数据相比较的,而后者是多个角度测量结果的平均,因此,KLEED 计算也必须反映这种平均特性。有两种办法可以选用,一是在和实验相同的一组入射条件下,用组成原子的原子散射因子计算出模型的一组相应的 KLEED 强度曲线,对这些曲线再进行平均(即 CMTA)<sup>[10]</sup>。另一个办法是先求出各组成原子的和实验相同的一组入射条件下的散射因子  $f(\theta, E)$  的平均<sup>[4]</sup>,即计算出表面的每一种原子各自的平均复散射因子,之后将它们用于模型的 KLEED 强度计算,然后将计算的强度曲线直接和实验 CMTA 曲线比较。这一方法的计算量仅为前一方法的十分之一左右。计算量小是能在大的参数范围内对模型进行优化的重要条件,因此我们采用了对散射因子  $f(\theta, E)$  进行平均的方法。至于这种方法的适用性,我们将在后面给以证明。

在这种 KLEED 方法中,衍射束  $(g, h)$  的强度计算公式是:

$$I_{gh}(S_{\perp}) = \left| \sum_i \bar{f}_{i,gh}(S_{\perp}) \exp(-z_i/\lambda_0) \exp(i\mathbf{S} \cdot \mathbf{R}) \right|^2 S_{\perp}^{-\alpha}. \quad (3)$$

用这个公式计算出的强度曲线经展宽后将被用来直接和实验 CMTA 平均强度曲线比较。公式中  $\bar{f}_{i,gh}$  是第  $i$  个原子散射至  $(g h)$  衍射束的平均复原子散射因子，它是  $S_{\perp}$  的函数， $S_{\perp}$  是  $\mathbf{S}$  在表面法线方向的投影。而在入射角  $\Theta = 0^\circ$  时， $\mathbf{S} = (g, h, k_0 + \sqrt{k_0^2 - g^2 - h^2})$ ， $k_0 = \sqrt{E + V_0}$  为入射波矢，其中  $V_0$  为内势， $E$  为人射电子能量。 $z_i$ 、 $\mathbf{R}_i$  分别为第  $i$  个原子距表面的垂直距离和位置矢量， $\lambda_0$  为人射电子的平均自由程， $\alpha$  为衰减因子。

平均复原子散射因子  $\bar{f}_{i,gh}(S_{\perp})$  的具体求法是：对某一衍射束  $(g h)$ ，在和实验相同的一组入射条件下，先根据某原子  $i$  的相移求出其相应的一组原子散射因子  $f_i(\Theta, E)$ ，然后用和 CMTA 相同的办法计算出它们的平均值  $\bar{f}_{i,gh}(S_{\perp})$ （它的模和辐角都只与原子种类；表面结构的对称性、衍射束的指数有关，而与原胞结构无关）。

为了便于对  $V_0$  优化，宜采用  $I-E$  曲线的形式，我们利用上面给出的  $\Theta = 0^\circ$  时的  $\mathbf{S}$  与  $E$  的关系，将 (3) 式变换为：

$$I_{gh}(E) = \left| \sum_i \bar{f}_{i,gh}(E) \exp(-z_i/\lambda_0) \exp(i\mathbf{S} \cdot \mathbf{R}) \right|^2 E^{-\alpha}, \quad (4)$$

其中  $\bar{f}_{i,gh}(E)$  的取值等于能量  $E + V_0$  对应的  $S_{\perp}$  下的  $\bar{f}_{i,gh}(S_{\perp})$  值。 $\alpha$  为相应的衰减因子。

由 (4) 式计算得到强度曲线后，再用 (2) 式加以展宽，即得到最后的 KLEED 强度曲线。由于  $\bar{f}_{i,gh}(E)$  不随模型而异，所以在整个寻求表面结构过程中只需计算一次。之后对每个模型的每个衍射束只需计算一次强度曲线。这就使这种方法的计算量比不用平均复原子散射因子的方法小一个数量级左右。从而为彻底优化结构参数创造了极为有利的条件。

### 三、对新的 KLEED/CMTA 计算方法的检验

象过去的工作<sup>[1,2]</sup>中那样，用已知结构表面的实验 CMTA 曲线来检验新的 KLEED 计算方法是有一定困难的，这不仅因为结构已知的合适的表面几乎没有，而且实验曲线和已有的结构参数都难免存在误差。幸好，DLEED 理论已被证明是十分完善的<sup>[11-13]</sup>，即对结构精确已知的表面所做的 DLEED 计算曲线和实验曲线的符合是极佳的。换句话说，一已知表面的 DLEED 计算曲线可以被看成是这个表面的精确的实验曲线，从而可被用来对 KLEED 计算方法进行检验。检验的具体步骤是：给定一个表面结构模型；用 DLEED 方法计算出不同入射角度下的强度曲线；对这些曲线作 CMTA 平均后得到单次散射的强度曲线（简称为理论 CMTA 曲线，它们可被看成该表面的实验 CMTA 曲线）；再用 (4) 式和 (2) 式计算同一模型的 KLEED 强度曲线；比较 KLEED 强度曲线和理论 CMTA 曲线。如果两者符合程度很好，就说明 KLEED 计算公式 (4) 及有关近似是合理的。当然，两者相符还说明所做的 CMTA 平均的确很好地消除了多次散射。由

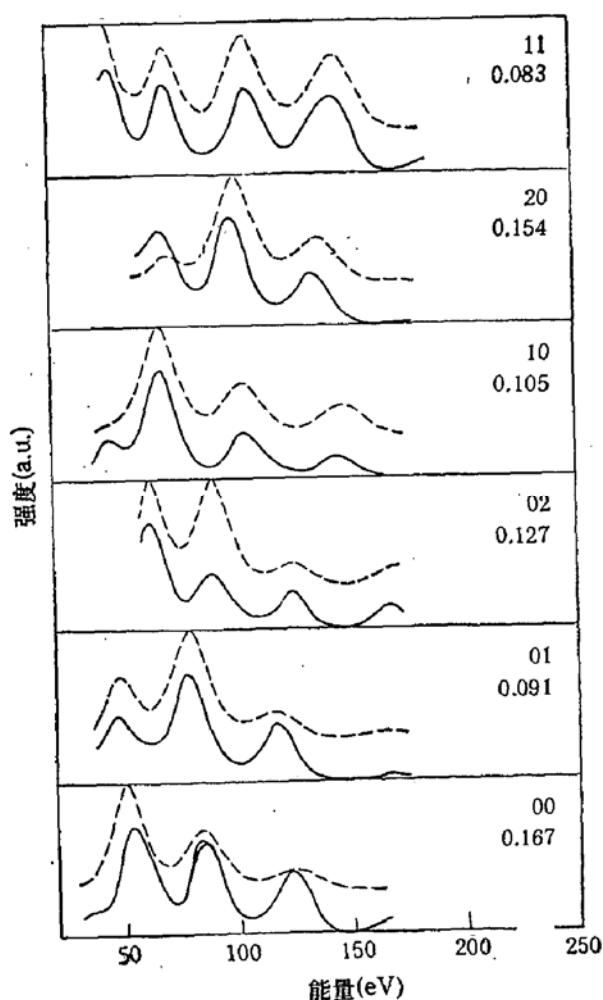


图1 理想的 GaP(111)  $1 \times 1$  表面的 KLEED 计算曲线(虚线)和 DLEED 理论 CMTA 曲线(实线, 见正文)的比较

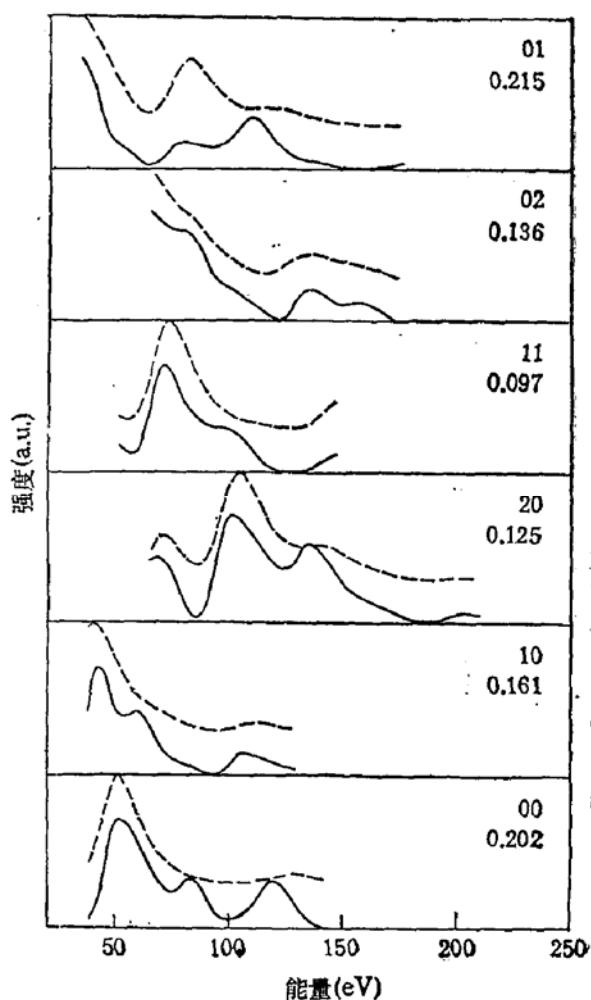


图2 NiSi<sub>2</sub>(111)  $1 \times 1$  表面的 KLEED 计算曲线(虚线)和 DLEED 理论 CMTA 曲线(实线)的比较

于这种方法只须对给定的结构模型作理论计算, 这就避免了实验误差以及表面结构参数不准确带来的困难。

按上面的方法和步骤, 我们用 GaP(111)  $1 \times 1$ 、NiSi<sub>2</sub>(111)  $1 \times 1$ 、Cu(001)  $1 \times 1$ -O 等不同结构的表面对新的 KLEED 方法进行了检验。

本工作的 DLEED 计算所用的程序和相移来自文献[12], 我们对程序作了少许必要的改动。计算中用了四级相移。

### 1. 在 GaP(111) $1 \times 1$ 表面上的检验

Ga 和 P 的原子序数分别为 31 和 15, 它们是两种散射本领相差很大的原子。我们所计算的模型为理想的无重构的 GaP(111)  $1 \times 1$  表面, 其第一层为 Ga 原子。在 DLEED 计算中 Ga 和 P 的内势都选为 10 eV, 入射角度的选择依据我们以前提出的均匀分散的原则<sup>[1]</sup>。我们对 6 个衍射束进行了计算, 每个衍射束计算了 9 个不同入射条件下的强度曲线。图 1 给出了模型的理论 CMTA 曲线和用(4)和(2)计算的 KLEED 强度曲线的比较。从中可看出两者符合很好。图中标出了每个衍射束的指数和相应的 R 因子。全部衍射束的平均  $R_{\text{VHT}}$  因子<sup>[14]</sup>为 0.12。但如果 KLEED 计算中只用  $f_{i,g,h}(E)$  的

模,所得结果就与理论 CMTA 曲线相差很多,两者间的总的  $R_{VHT} = 0.34$ 。这说明平均

复原子散射因子的辐角具有十分重要的作用。此外还说明我们得到的理论 CMTA 曲线的确是运动学的,即用较少的但入射角度均匀分散的强度曲线平均能很好地消除多次散射。

### 2. 在 $\text{NiSi}_2(111) 1 \times 1$ 表面上的检验

为了检查这种方法对不同类型结构的适用程度,我们选了一个结构更紧密而且是实际的  $\text{NiSi}_2(111) 1 \times 1$  表面进行检验。 $\text{NiSi}_2(111) 1 \times 1$  表面结构已由杨威生等人<sup>[4]</sup>用 DLEED 方法定出,按他们给出的结构参数我们对 6 个衍射束进行了计算(每个衍射束用了 11 个不同的人射角度, 00 束用了 10 个)。从图 2 给出的计算结果中我们可以看出 KLEED 强度曲线和理论 CMTA 曲线符合很好, 总  $R_{VHT} = 0.16$ 。这说明这种 KLEED/CMTA 方法适用于这种致密类型的结构。

### 3. 在 Cu-O 吸附系统上的检验

上面的两种结构都是两种元素形成均匀化合物的情况,为了证明对吸附系统这种 KLEED/CMTA 方法也适用,我们对假定的一个 Cu-O 吸附系统进行了计算。所用的模型只是用 O 原子替代了理想 Cu (001)  $1 \times 1$  表面的第一层原子,而位置不变。对每个衍射束我们都计算了 12 个不同人射条件下的强度曲线。图 3 给出的计算结果表明两种曲线符合很好,总的  $R_{VHT} = 0.13$ 。从中我们可以得出结论:这一方法也适用于吸附系统。

从上面的结果可以看出:引入平均复散射因子后,KLEED/CMTA 方法已成为一种完善的表面结构分析方法。它可用于各种表面,而且十分简单、有效、可靠。

## 四、讨 论

我们在上面提到的文章<sup>[4]</sup>中已证明在角度分布合适时,数量不很多的(5—10 条)的  $I-S_1$  曲线平均便能有效地消除多次散射,得到的 CMTA 曲线与平均中所用的曲线数目及具体入射角度都无关。为了能使 KLEED 计算曲线和实验曲线符合,KLEED 计算中所用的平均复散射因子  $\bar{f}_{i,g_i}(E)$  也应该有这样的稳定值。那么,我们定义的平均复散射因子是否具有这一特性呢?为了检验这点,我们对平均复散射因子  $\bar{f}_{i,g_i}(E)$  与平均时

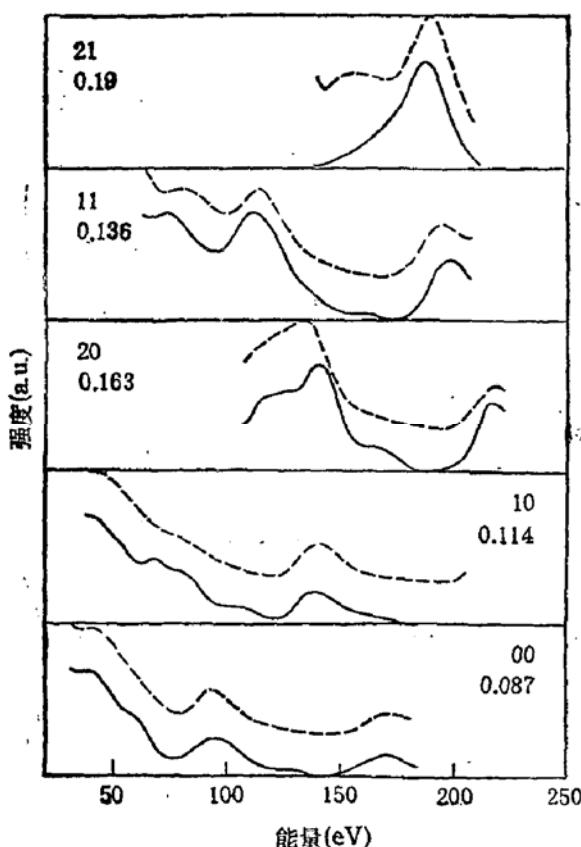


图 3  $\text{Cu}(001) 1 \times 1\text{-O}$  吸附系统的 KLEED 计算曲线(虚线)和 DLEED 理论 CMTA 曲线(实线)的比较

所用的散射因子的数目以及具体的人射条件的关系进行了计算考察。结果说明，平均复散射因子  $\bar{f}_{i,gk}(E)$  的确存在一个稳定值。以图 4 给出的 Ga 和 P 的结果作为例子，从中可以看出不同角度的两组散射因子平均所得结果确实很一致，即说明平均复散射因子  $\bar{f}_{i,gk}(E)$  已收敛到一个稳定值。

由于一种原子的平均复散射因子虽和表面结构的对称性及衍射束的指数有关，但却与原胞结构无关，这样，对不同的表面，只要它们的对称性相同，同种原子同一衍射束的平均复散射因子便相同。平均复散射因子的这一特性为以后的 KLEED 计算提供了进一步的方便。例如，在对  $\text{Si}(111)\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面进行 KLEED 计算时使用的 Si 原子的某个衍射束的平均复散射因子也可用在对  $\text{Si}(111)\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Sn、 $\text{Si}(111)\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Pb 等表面的相应衍射束进行的 KLEED 计算中，而不需重新计算。

我们以前的工作<sup>[1,2]</sup>已经通过实验指出：在一般 LEED 设备允许的角度范围内 ( $\Theta = 0\text{--}20^\circ$ ,  $\varphi = 0\text{--}360^\circ$ )，依据均匀分散原则对人射条件进行仔细挑选后，数量不多 (5—10 条) 的强度曲线平均便能很好地消除多次散射。但在那些工作中，我们只是在单种原子构成的表面上对这一点进行了检验。本工作中我们把 KLEED 计算曲线与 DLEED 理论 CMTA 曲线进行了比较并取得一致，这也是从另一方面对这一点进行的检验。在多种不同类型的由不同种原子构成的表面上所做的检验说明这种获得 CMTA 曲线的方法在这些表面上依然适用。以前在做 CMTA 的过程中人们虽然使用了很多条曲线，一般为几十条，但由于所用的人射角度不够均匀分散，致使他们所得的 CMTA 曲线中多次散射消除得并不很好。这是造成 CMTA 方法没能被广泛使用的重要原因之一。由此看来，做 CMTA 过程中入射角度的均匀分散是十分重要的。

以前人们认为在两种或多种原子构成的表面上 CMTA 是不成功的，并把原因归为由于存在多种不同散射因子，一些感兴趣的特征可能在数据平均过程中被抹掉<sup>[3]</sup>。然而在对散射因子的处理加以改进后，我们已证明 CMTA 方法可广泛用于这些表面。所以以前人们对 CMTA 的看法是片面的，实际上 KLEED 计算中散射因子处理得不当才是以

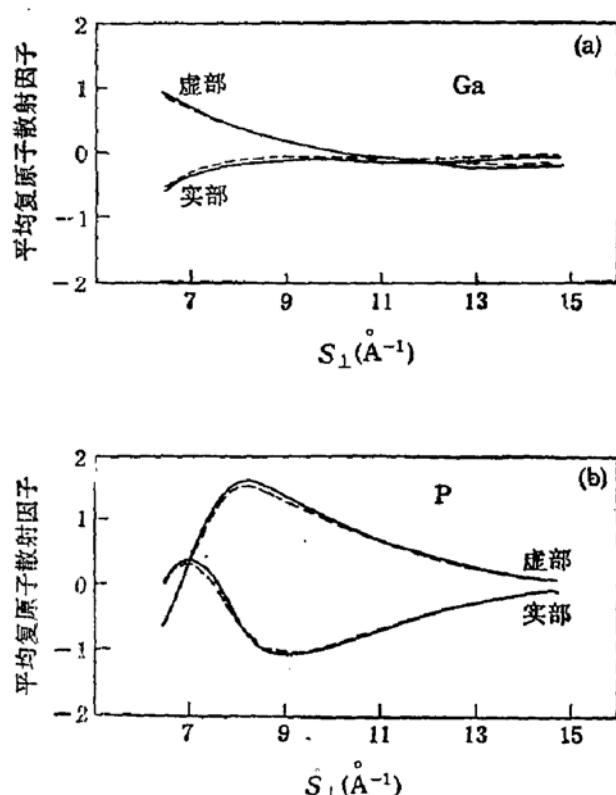


图 4 两组不同入射条件下的散射因子平均所得的平均复散射因子的比较 (GaP 的 00 束) a. Ga 的结果。b. P 的结果。实线所用的人射角分别为： $(0^\circ, 0^\circ), (4^\circ, 10^\circ), (5^\circ, 40^\circ), (8^\circ, 30^\circ), (10^\circ, 0^\circ), (12^\circ, 60^\circ), (15^\circ, 30^\circ), (18^\circ, 15^\circ), (20^\circ, 50^\circ)$ ，它们是 DLEED 计算中所用的角度；虚线所用的分别为： $(3^\circ, 55^\circ), (6^\circ, 10^\circ), (9^\circ, 30^\circ), (14^\circ, 45^\circ), (17^\circ, 20^\circ), (19^\circ, 36^\circ), (21^\circ, 15^\circ)$

前 KLEED/CMTA 方法在不同种原子构成的表面上不成功的真正原因。

## 五、总 结

为了能将 KLEED/CMTA 方法用来确定由不同种原子构成的表面结构，同时又尽可能地使计算简捷，我们在 KLEED 计算中引入了一个平均复原子散射因子，并且在多个不同类型的由不同种原子构成的表面上用 DLEED 计算对它进行了检验。结果表明这种平均复散射因子的引入是合理的，而且这种 KLEED/CMTA 方法可广泛适用于各种表面。

这一方法成功的主要原因在于：

1. 本工作引入的平均复原子散射因子不仅反映了原子对被散射的电子的位相、振幅的影响，而且还反映了 CMTA 的平均特性。

2. 在做 CMTA 的过程中对入射条件按均匀分散的原则进行了选择，这使多次散射得到了最有效地消除。

以前工作正是在这两方面处理不当致使 KLEED/CMTA 方法一度被人们放弃。

此外，引入平均复散射因子后的 KLEED 计算比不引入时约快十倍。这就为在大的参数范围内对模型进行彻底的优化创造了极有利的条件，使这种 KLEED/CMTA 方法在表面结构的研究中有广泛的应用前景。我们已将它用于确定  $\text{Si}(111)\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag 表面的结构，并获得了十分满意的结果。

**致谢：**作者贾金峰感谢张云、高山虎在准备本文中提供的帮助。

## 参 考 文 献

- [1] 贾金峰, 李燕芳, 赵汝光, 杨威生, 物理学报, 41(5), 801(1992).
- [2] 贾金峰, 赵汝光, 杨威生, 物理学报, 41(5), 809(1992).
- [3] M. G. Lagally, T. C. Ngoc and M. B. Webb, *Phys. Rev. Lett.*, 26, 1557 (1971).
- [4] T. C. Ngoc, M. G. Lagally and M. B. Webb, *Surf. Sci.*, 35, 117 (1973).
- [5] H. Huang, S. Y. Tong, W. S. Yang, H. D. Shih, and F. Jona, *Phys. Rev.*, B42, 7483 (1990).
- [6] M. G. Lagally, T. C. Ngoc and M. B. Webb, *J. Vac. Sci. Technol.*, 9, 645(1972).
- [7] M. G. Lagally, J. C. Buchholz and G. -C. Wang, *J. Vac. Sci. Technol.*, 12, 213(1975).
- [8] L. McDonnell, D. P. Woodruff and K. A. R. Mitchell, *Surf. Sci.*, 45, 1(1975).
- [9] J. H. Onufenko and D. P. Woodruff, *Surf. Sci.*, 91, 400(1980).
- [10] Yasushi Terada, Tohru Yoshizuka, Kenjiro Oura and Teruo Hanawa, *Surf. Sci.*, 114, 65(1982).
- [11] J. B. Pendry, *Low Energy Electron Diffraction* (Academic, New York 1974).
- [12] M. A. Van Hove, S. Y. Tong, *Surface Crystallography by LEED* (Springer, Berlin, 1979).
- [13] F. Jona, J. A. Strozier Jr., and W. S. Yang, *Rep. Prog. Phys.*, 45, 527 (1982).
- [14] M. A. Van Hove, S. Y. Tong and M. H. Elconin, *Surf. Sci.*, 64, 85(1977).
- [15] W. S. Yang, F. Jona and P. M. Marcus, *Phys. Rev.*, B28, 7337 (1985).

## New KLEED/CMTA Method Approach ——for Surfaces Consisting of Different Atoms

Jia Jinfeng, Zhao Ruguang, Yang Weisheng

(Department of Physics, Peking University, Beijing, 100871)

### Abstract

We have introduced an averaged complex atomic scattering factor into the kinematic low energy electron diffraction (KLEED) approach in order to make it applicable to surfaces consisting of different kinds of atoms, moreover, to make it much more effective than the approaches in earlier works. To verify the validity of the new approach, we carried out dynamic LEED calculations on three different types of surfaces with given structures. The results show that the new KLEED approach in conjunction with the Constant Momentum Transfer Averaged experimental LEED intensity curves is a very simple and effective method for surface crystallography. The approach has been successfully applied to the determination of the structure of the Si(111)  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Ag surface.

PACC: 6820