

# 高指数稳定硅表面的低能电子衍射图分析\*

姜金龙 李文杰 周立 赵汝光† 杨威生

(北京大学物理系, 人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

(2002 年 5 月 13 日收到, 2002 年 6 月 12 日收到修改稿)

报道了在系统搜寻稳定硅表面的过程中对四个稳定高指数表面  $S(1, 1, 11)$  ( $1, 0, 8$ ) ( $2, 1, 2$ ) 和  $(15, 1, 17)$  的低能电子衍射 (LEED) 图进行的分析和结果. 这些表面经充分退火后都能给出属于各自表面的 LEED 图, 而不是小面化的, 说明它们都是稳定的. 从它们的 LEED 斑点强度分布特征不仅可以推断  $(15, 1, 17)$  是主稳定表面, 而  $(1, 1, 11)$ ,  $(1, 0, 8)$  和  $(2, 1, 2)$  则是副稳定表面, 还能知道这些副稳定表面的原胞结构特征, 甚至许多重要细节. 从原胞结构特征来看, 这些副稳定表面有可能用作生长周期量子线的模板.

关键词: 硅, 高指数表面, 近邻面, 原胞小面化, 低能电子衍射 (LEED)

PACC: 6114H, 6820

## 1. 引 言

几十年来, 由于微电子技术发展的需要, 对硅的低指数  $(0, 0, 1)$  和  $(1, 1, 1)$  表面进行了充分的研究<sup>[1, 2]</sup>. 近年来, 随着纳米技术的发展, 研究的重点逐渐转向了高指数硅、锗表面, 这是因为它们既可能成为纳米结构的表面<sup>[3]</sup>, 也可望作为生长纳米结构的模板<sup>[4]</sup>. 毫无疑问, 研究得最多的稳定高指数表面为  $S(1, 1, 3)$ <sup>[5, 6]</sup>, 同时对  $S(1, 1, 4)$ <sup>[7]</sup> ( $1, 1, 2$ )<sup>[8, 9]</sup> ( $3, 3, 7$ )<sup>[10, 11]</sup>,  $(5, 5, 12)$ <sup>[12]</sup> ( $3, 1, 3$ )<sup>[13]</sup> 等也有不少研究. 近来又发现了多个新的高指数稳定硅表面:  $\text{Si}(20, 4, 23)$ <sup>[14, 15]</sup> ( $15, 3, 23$ )<sup>[15]</sup> ( $3, 1, 4$ )<sup>[15]</sup> ( $3, 1, 7$ )<sup>[15]</sup> ( $1, 0, 3$ )<sup>[16]</sup> 和  $(1, 0, 5)$ <sup>[17]</sup>. 在对稳定锗表面进行了系统的搜索和研究的基础上<sup>[16, 18]</sup>, 最近我们又开始了对稳定硅表面作相应的搜索和研究.

尽管对锗的研究<sup>[18]</sup>主要用的是扫描隧道显微镜 (STM), 我们发现为了搜索稳定表面使用低能电子衍射 (LEED) 更为快捷<sup>[15]</sup>. 不仅如此, 如果只用 STM 有些稳定表面, 如  $S(1, 0, 3)$ <sup>[16]</sup> 和  $(1, 0, 5)$ <sup>[17]</sup>, 甚至还会被遗漏. 此外, 已经知道稳定表面可分为两种: 主稳定表面和副稳定表面, 后者的原胞是由前者的小面构成的, 或者说后者的原胞是小面化的<sup>[18]</sup>. 要判断一个表面是前者还是后者, LEED 也比 STM

有效<sup>[17]</sup>.

本文报道我们在系统搜寻稳定硅表面的过程中对四个稳定高指数表面  $S(1, 1, 11)$  ( $1, 0, 8$ ) ( $2, 1, 2$ ) 和  $(15, 1, 17)$  的 LEED 图进行的分析以及得到的许多关于这些表面结构的重要信息.

## 2. 实验方法

实验所用的超高真空 (UHV) 系统的背景真空度优于  $6.65 \times 10^{-8}$  Pa, LEED 系统为 Omicron 透射式, 衍射图的采集由计算机-摄像机系统完成, 俄歇电子能谱 (AES) 用 Riber MAC-2 电子能量分析器采集. 实验样品为 p 型硅表面, 电阻率为  $7\Omega \cdot \text{cm}$  或  $3000\Omega \cdot \text{cm}$  (对实验结果无影响), 晶面方向与标定表面的指数的方向偏差小于  $1^\circ$ , 样品尺寸约为  $7\text{mm} \times 7\text{mm} \times 0.5\text{mm}$ . 分析前样品表面用氦离子轰击 ( $6.65 \times 10^{-3}$  Pa  $\times$  600V  $\times$  8mA, 约 2h) 作清洁处理, 随后充分退火 (在  $1000\text{—}1100^\circ\text{C}$  数分钟, 然后缓冷), 如此反复几次. 样品架用钼制成, 以免表面被镍污染. 为了使样品表面达到真正的稳定态, 我们特别注意做到充分退火. 表面的充分退火是指在每一温度阶段停留足够长时间以使表面结构达到稳定, 即 LEED 图形不再发生变化. 表面从高温降到室温的大致过程为:  $900\text{—}700^\circ\text{C}$  平均降温速率为  $20^\circ\text{C}/\text{min}$ ,  $700\text{—}500^\circ\text{C}$  为

\* 国家自然科学基金 (批准号: 19634010) 资助的课题.

† 通信联系人.

10°C/min, 500—450°C为5°C/min. 我们注意到表面的 LEED 图形在 450°C 以下不会发生变化了, 所以在 450°C 以下就令其自然冷却至室温.

### 3. 结果和讨论

首先我们研究  $S(1, 1, 11)$  表面. 在图 1(a) 和 (b) 里给出了经充分退火的清洁  $S(1, 1, 11)$  表面的两个典型的 LEED 图. 与图 1(c) 的模拟 LEED 图相比, 可以知道该表面不是小面化的, 而是形成  $(1, 1, 11)$  表

面的  $(10, 02)$  和  $(11, 02)$  两种重构 (或者简单地说两种“ $1 \times 2$ ”重构), 因而是一个稳定表面. 不难看出, 尽管实验图与模拟图的平移对称性相符极佳, 两种图之间仍有十分明显的差异: 在实验图中可见的分数斑点 (在斑点密集的各行里) 都只出现在  $(001)1 \times 2$  LEED 图的分数斑点附近, 如图 1(d) 所示. 这种 LEED 斑点只在一定范围可见的现象, 或者斑点强度调制现象并不少见, 起源于表面原胞小面化<sup>[17, 18]</sup>. 下面简述原胞小面化引起斑点强度调制的原因以及从中可以提取的原胞结构信息.

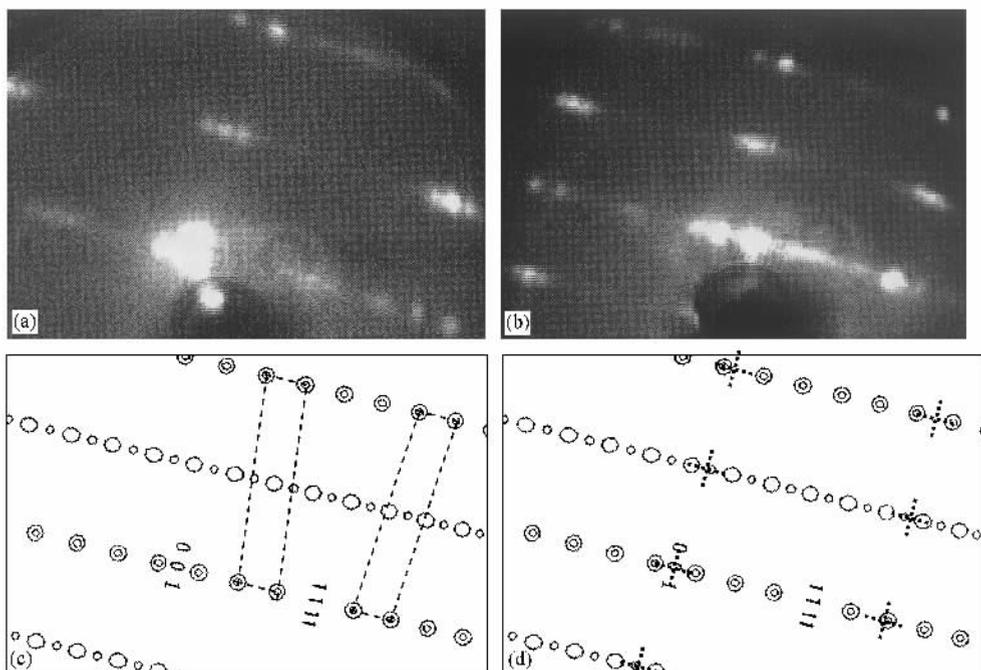


图 1 充分退火后的清洁  $S(1, 1, 11)$  表面的 LEED 图 (a) 电子能量 30 eV. (b) 55 eV. (c) 有  $(10, 02)$  和  $(11, 02)$  两种重构共存的  $S(1, 1, 11)$  表面的模拟 LEED 图 (30 eV), 图中画出了这两种互为镜像的倒易原胞. 注意, 两种重构的整数斑点完全重合, 而分数斑点则互相穿插. (d) 同 (c), 只是还用虚线十字标出了  $S(001)1 \times 2$  斑点的位置

如果一个高指数面  $H$  的原胞只是一个低指数面  $L$  的小面, 或者说是完全小面化到这个低指数面的. 那么, 若用  $\text{surface}[H]$  代表  $H$  表面的结构, 用梳状函数  $\text{comb}[x]$  代表一个表面的点阵,  $H$  面的原胞形状  $UC[H]$  在这里起窗函数 (窗内取值 1, 窗外取值 0) 的作用, 则  $H$  表面可表示为<sup>[19]</sup>

$$\text{surface}[H] = \text{comb}[H] * \{UC[H] \times \text{comb}[L]\},$$

其中  $*$  为卷积算符. 从卷积定理可知, 表面的 LEED 图样, 即表面的傅里叶变换为<sup>[19]</sup>

$$\mathcal{A}\{\text{surface}[H]\} = \mathcal{A}\{\text{comb}[H]\} \times (\mathcal{A}\{UC[H]\} * \mathcal{A}\{\text{comb}[L]\}).$$

该式说明  $H$  面的衍射斑点只在  $\mathcal{A}\{UC[H]\} \neq 0$  的区域可见, 而  $\mathcal{A}\{UC[H]\} * \mathcal{A}\{\text{comb}[L]\}$  则表明

这样的区域在  $L$  面的每一个 LEED 斑点的位置都有一个. 显然, 如果在  $H$  表面的原胞里的  $L$  小面的大小  $\text{shape}[L]$  小于  $UC[H]$ , 那么斑点应只在  $\mathcal{A}\{\text{shape}[L]\} * \mathcal{A}\{\text{comb}[L]\}$  范围可见. 这就是原胞小面化导致 LEED 斑点强度调制的原因. 现在, 将此结果运用到  $S(1, 1, 11)1 \times 2$  的 LEED 图. 先考虑分数斑点的情况, 这时在一个  $(001)1 \times 2$  斑点附近可见的  $(1, 1, 11)$  “ $1 \times 2$ ”分数斑点不多于三个 (见图 1(a) 和 (b)), 即出现的范围约为  $1.0 \text{ nm}^{-1}$ , 若强度小于最大值的  $1/10$  的斑点在实际上都不可见, 则可知  $\text{shape}[L]$ , 即一个  $(1, 1, 11)1 \times 2$  原胞中的  $(001)1 \times 2$  小面的形状, 在“ $1 \times$ ”的方向上的宽度约为  $1.5 \text{ nm}$ . 由此我们推断, 在切割的  $S(1, 1, 11)$  表面 (见图 2(a)) 的每个

原胞里的两个(001)小面在重构表面里一定合并成了一个,而分隔它们的单台阶一定也合并成了双台阶,以至可以给出十分具体的结构模型(见图2(b)和(c)).图2(b)和(c)里的两种重构互为镜像,它们在表面共存,使表面产生如图1(c)所示的LEED图.  $S(1,1,11)$ “ $1 \times 2$ ”的整数斑点几乎都能看得见,而没有明显的强度调制(见图1(a)和(b)),是因为在一个(1,1,11) $1 \times 2$ 原胞里对分数斑点有贡献的只有四个二聚体(dimer),而对整数斑点有贡献的却还有许多别的原子,如双台阶上的以及二聚体下面的原子,它们的贡献显然不会因存在(001) $1 \times 2$ 小面而受到调制.

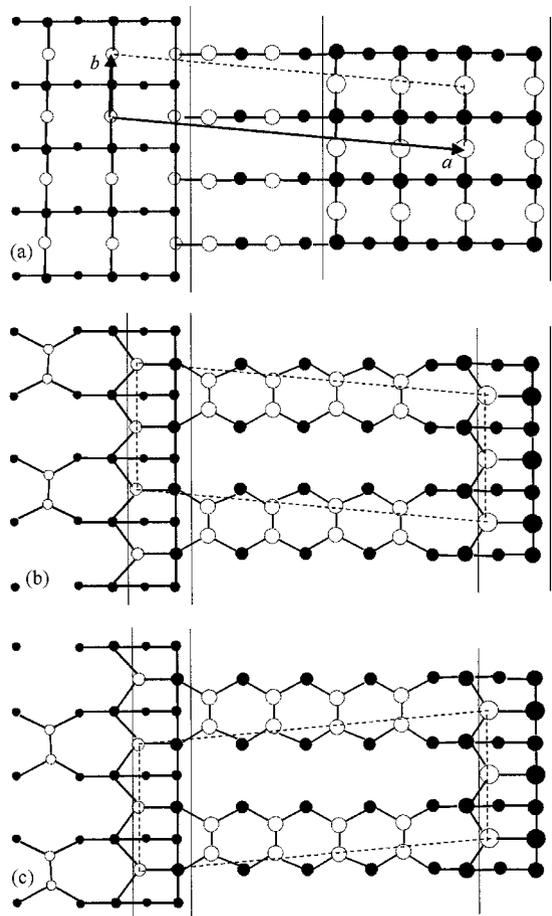


图2 不同的 $S(1,1,11)$ 表面的结构(顶视图)图中圆圈代表硅原子,离表面越远的越小,白和黑圆圈分别代表有和没有悬挂键的原子,黑线代表原子间的连线,箭头表示表面基矢,虚线画出表面原胞形状。(a)切割的理想表面,细线表示单原子高度台阶(或单台阶)。(b) $(10,0,2)$ 重构的表面,双细线表示双原子高度台阶(或双台阶)。(c) $(11,0,2)$ 重构的表面(与 $(10,0,2)$ 重构互为镜像)

至于形成这两种“ $1 \times 2$ ”重构的动因,显然有两

方面:一方面,众所周知, $Si(001)1 \times 2$ 的表面能很低;另一方面,涉及的双台阶正是多年前 Chadi 提出的 DB 型双台阶<sup>[20]</sup>,也具有很低的能量.值得指出的是,这个通过分析 LEED 斑点强度调制而导出的结构模型与 STM 观察结果完全一致<sup>[21,22]</sup>,说明分析是正确的.

下面,用同样的思路来研究  $Si(10,8)$ 和 $(2,1,2)$ 等其他几个表面.图3(a)和(b)给出了经充分退火后的清洁  $Si(10,8)$ 表面的 LEED 图.和图3(c)中的模拟 LEED 图相比,可以知道在  $Si(10,8)$ 表面上有 $(10,0,2)$ 和 $(11,0,2)$ 两种互为镜像的畴共存.这样和  $Si(1,1,11)$ 表面一样,这个表面也是稳定的.此外,不难看出,它的原胞必定也是小面化到(001)的.但是要注意一个有趣的差别.通过比较图3中的实验和模拟 LEED 图可以看出,一种 $(10,8)$ 重构的原胞中的(001)小面是 $1 \times 2$ 重构的,而另一种的则是 $2 \times 1$ 重构的,而在  $Si(1,1,11)$ 的两种原胞中的(001)小面都是 $1 \times 2$ 重构的.这种差别的原因是显而易见的.

同样,从可见斑点出现的范围可以估计出一个  $Si(10,8)$ 的原胞里的(001) $1 \times 2$ 或 $2 \times 1$ 小面的尺度,并进而推断(001)小面宽度也应在1.5nm左右,从而也应该只存在双台阶,如图4(b)和(c)所示.至于图中给出的双台阶的原子结构细节,仅供进一步研究参考.

作为  $Si(1,1,1)$ 表面的近邻面,本文也研究了  $Si(2,1,2)$ 表面.经充分退火后能给出很好的 $(2,1,2)2 \times 1$  LEED 图,说明这个表面也是稳定的.有趣的是它的 LEED 图也有类似的强度调制,从而说明它的原胞也是小面化的,但是这里是小面化到 $(1,1,1)1 \times 1$ ,而不再是(001)了.同样,在实际表面上存在的只有双台阶,而不是理想切割表面上的单台阶.限于文章篇幅,这里只将推论的表面结构在图5里给出.为了充分展示表面的双台阶形貌,这里使用了侧视图.

本文研究的最后一个表面是  $Si(9,0,10)$ .与其他三个表面不同,这是一个不稳定表面.从图6(a)和(b)中的 LEED 图可以看出,经充分退火后该表面已完全小面化了.各小面的 LEED 图的叠加虽很复杂,使用最近发展起来的 LEED 图拟合方法<sup>[15]</sup>,可以知道该表面小面化到 $(15,1,17)$  $(15,1,17)$ 以及 $(10,1,1)$ 小面.当然,这也说明 $(15,1,17)$ 和 $(10,1,1)$ 都是稳定表面.关于  $Si(10,1)$ 表面已有不少研究,而关于  $Si(15,1,17)$ 表面,却所知甚少.但是我们发现,虽然  $Si$

(15,1,17)与(101)面的夹角仅 $4.38^\circ$ ,而后者又是一个主稳定表面,它的 LEED 图却没有由(101) $1 \times 1$ 或 $16 \times 2$ <sup>[23]</sup>引起的强度调制,也没有由其他表面引起的强度调制.这就是说,Si(15,1,17)表面的原胞没有小面化,因而和Si(101)一样,也是一个主稳定表面.这一事实实在出乎意料:两个主稳定表面相

隔如此之近.此外还有一点是可以肯定,那就是存在于它的理想切割表面上的很大的(101)小面(见图(c)),在实际表面上被改变得完全不同了.但是仅根据 LEED 图,无法进一步知道它的原胞结构到底是怎样的,因而有待用其他方法作进一步研究.

在引言里已说到,我们对稳定硅表面进行系统

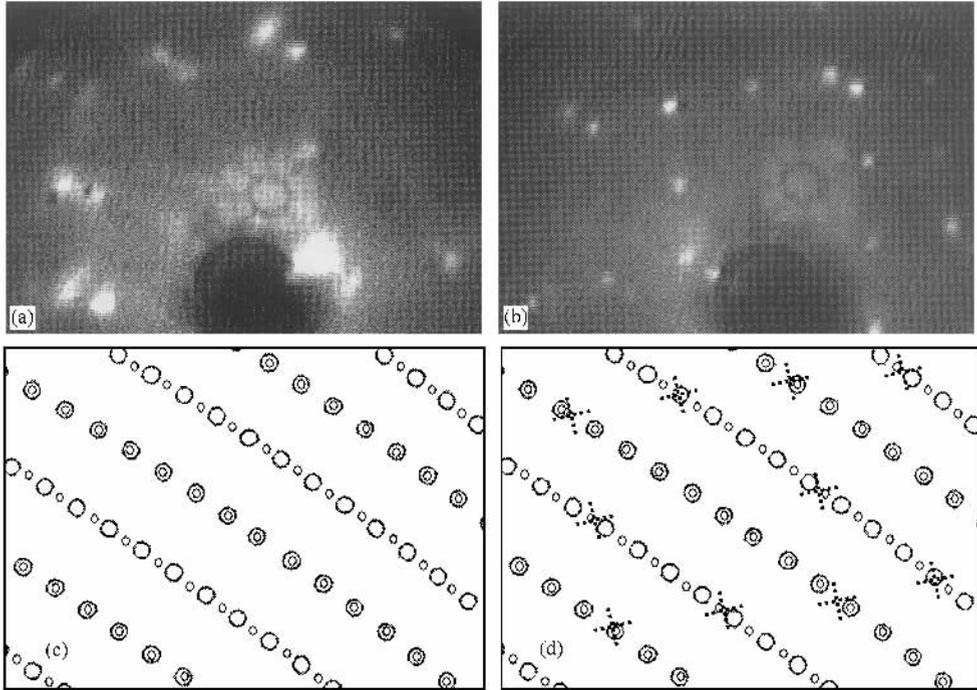


图3 充分退火后的清洁Si(108)表面的LEED图 (a)电子能量34 eV. (b)60 eV. (c)有(10,02)和(11,02)两种畴共存的Si(108)表面的模拟LEED图(34 eV). (d)同(c),只是还用虚线十字标出了Si(001)表面的 $1 \times 2$ 和 $2 \times 1$ 两种重构的LEED斑点应在的位置.将模拟图与实验图比较时要注意,在(10,02)畴中的(001)小面是 $1 \times 2$ 重构的,而在(11,02)畴中的则是 $2 \times 1$ 重构的(见图4(b)和(c)),所以,在实验图中可见的分数斑点并不比整数斑点更密集

搜索的动机之一是寻找可用来生长周期性纳米结构的模板.从上面的讨论知道,这里研究的三个副稳定表面,即Si(1,1,11)(108)和(212)的表面形貌都很像楼梯.具体来说,这些“楼梯”的宽约一纳米的台面被高约半纳米的双台阶隔开.由于最近有人发现,Si(111) $7 \times 7$ 表面的纳米尺度周期结构可被用来生长全同量子点<sup>[24]</sup>,我们有理由期望,这里发现的Si(1,1,11)(108)和(212)表面的楼梯状形貌可被用来生长某些材料的周期性排列的全同量子线.

## 4. 结 论

综上所述,我们得到以下结论:1) Si(1,1,11),

(108)(212)和(15,1,17)表面都是稳定表面,因为在被充分退火后它们都能给出自己的,而不是其他小面的LEED图.2)其中,Si(1,1,11)(108)和(212)面的LEED图的可见斑点出现的地方成二维周期排列,即有强度调制,说明这些表面的原胞的大部分是一个低指数小面,也就是说它们的原胞是小面化的,从而是副稳定表面.3)相反,Si(15,1,17)面不发生原胞小面化,从而是主稳定表面,虽然它离开另一个主稳定表面Si(101)只有 $4.38^\circ$ .4)通过对LEED图强度调制的定量分析还知道了这些副稳定表面的原胞结构的很多重要细节,包括所包含的低指数小面的指数,重构和尺度,以及所包含的台阶的高度和结构等.

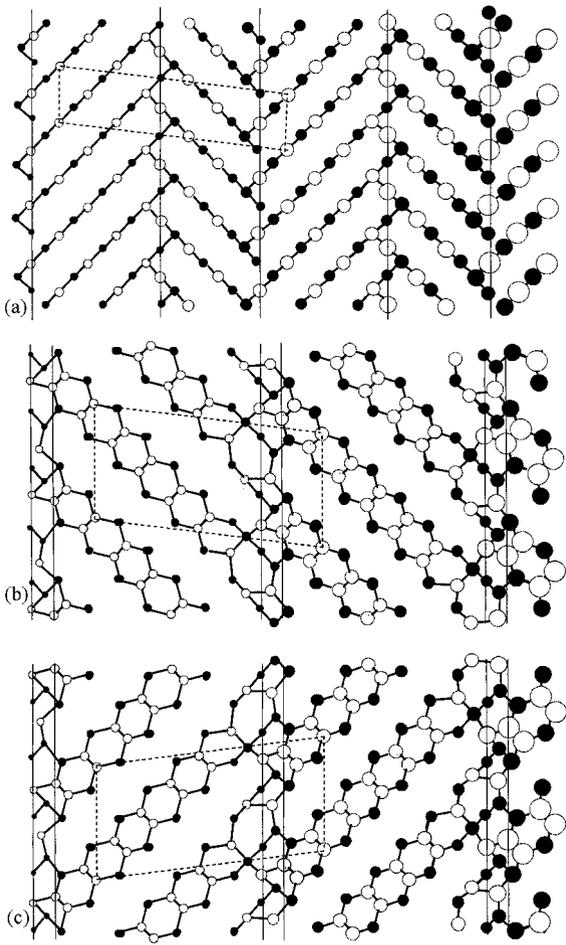


图4 不同的 $S(108)$ 表面的结构(顶视图 $\chi$ 所用符号同图2)  
 (a)切割的理想表面.(b) $S(108)\chi(10,02)$ 重构表面,其中的(001)小面是 $1\times 2$ 重构的.(c) $S(108)\chi(11,02)$ 重构表面,其中的(001)小面是 $2\times 1$ 重构的

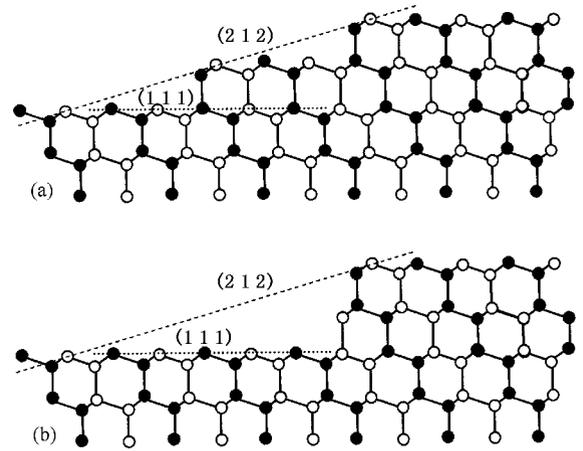


图5 不同的 $S(212)$ 表面的结构(侧视图 $\chi$ 所用符号同图2)  
 (a)切割的理想表面.(b) $S(212)\chi 2\times 1$ 重构表面,其中的(111)小面不是重构的,而是 $1\times 1$ 的

最后,我们有理由期望 $S(1,1,11)$ (108)和(212)表面的楼梯状形貌可用来生长某些材料的周期性排列的全同量子线.

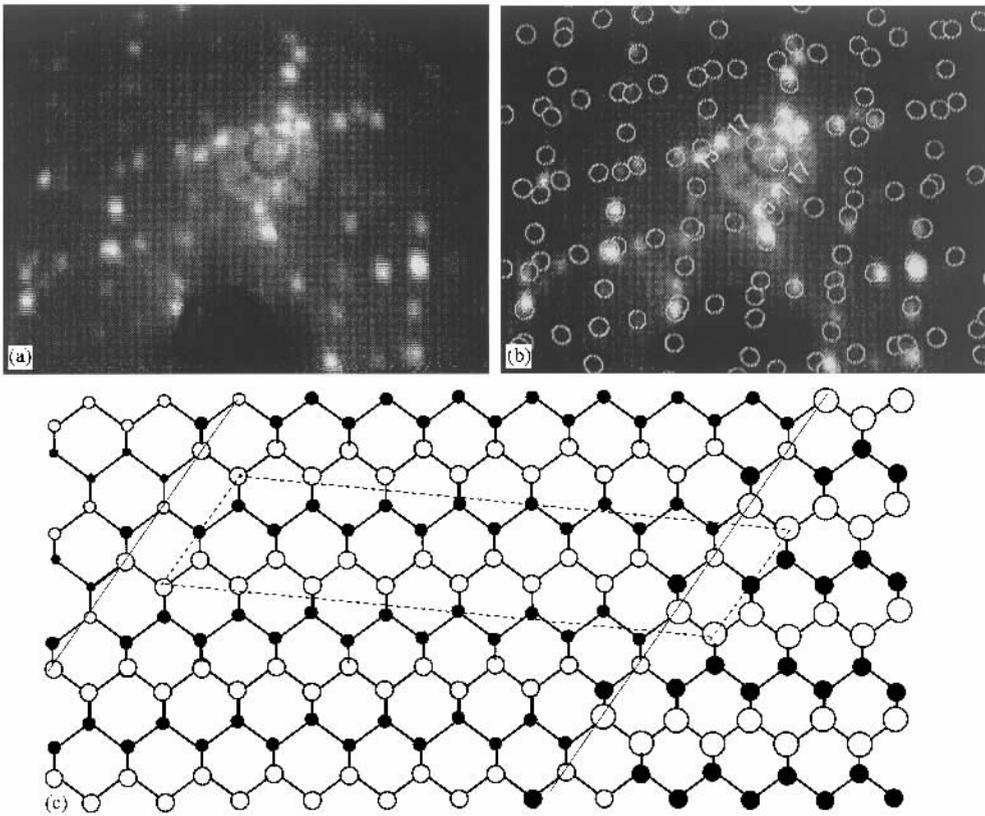


图 6 (a)充分退火后的清洁  $Si(9\ 0\ 10)$  表面的 LEED 图(28 eV).(b)同(a),但叠置了模拟的  $Si(15\ 1\ 17)$ 、 $(15\ 1\ 17)$  和  $(1\ 0\ 1)$  LEED 图.(c)切割的理想  $Si(15\ 1\ 17)$  表面的结构(顶视图)(所用符号同图 2)

本工作样品的切割,得到北京有色金属研究总院半导体材料工程研究中心陈坚邦教授的大力帮助.

- [ 1 ] Haneman D 1987 *Rep. Prog. Phys.* **50** 1045
- [ 2 ] Neddermeyer H 1996 *Rep. Prog. Phys.* **59** 701
- [ 3 ] Ross F M, Tromp R M and Reuter M C 1999 *Science* **286** 1931
- [ 4 ] Liu F, Tersoff J and Lagally M G 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 1268
- [ 5 ] Dabrowski J, Mussig H J and Wolff G 1994 *Phys. Rev. Lett.* **73** 1660
- [ 6 ] Hibino H and Ogino T 1997 *Phys. Rev. B* **56** 4092
- [ 7 ] Erwin S C, Baski A A and Whitman L J 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 687
- [ 8 ] Baski A A and Whitman L J 1994 *Phys. Rev. Lett.* **74** 956
- [ 9 ] Wang X S and Weinberg W H 1994 *Surf. Sci.* **314** 71
- [ 10 ] Hu X M, Wang E G and Xing Y R 1996 *Appl. Surf. Sci.* **103** 217
- [ 11 ] Jia Y *et al.* 1999 *Acta Phys. Sin.* (Overseas Edition) **8** 46  
Jia Y *et al.* 1999 *Surf. Sci.* **437** 299
- [ 12 ] Baski A A, Erwin S C and Whitman L J 1995 *Science* **269** 1556
- [ 13 ] Gai Z, Zhao R G, Sakurai T and Yang W S 2001 *Phys. Rev. B* **63** 085301
- [ 14 ] Gai Z *et al.* 2001 *Phys. Rev. B* **64** 125201
- [ 15 ] Li W J *et al.* 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2567 (in Chinese) [李文杰等 2002 物理学报 **51** 2567]
- [ 16 ] Gai Z, Yang W S, Zhao R G and Sakurai T 1999 *Phys. Rev. B* **59** 13003
- [ 17 ] Zhao R G *et al.* 2002 *Surf. Sci.* **517** 98
- [ 18 ] Gai Z, Yang W S, Zhao R G and Sakurai T 1999 *Phys. Rev. B* **59** 15230
- [ 19 ] Goodman J W 1968 *Introduction to Fourier Optics* (McGraw-Hill), pp10 - 25
- [ 20 ] Chadi D J 1987 *Phys. Rev. Lett.* **59** 1691
- [ 21 ] Swartzentruber B S *et al.* 1993 *Phys. Rev. B* **47** 13432
- [ 22 ] Baski A A, Erwin S C and Whitman L J 1997 *Surf. Sci.* **392** 69
- [ 23 ] Packard W E and Dow J D 1997 *Phys. Rev. B* **55** 15643
- [ 24 ] Li J L *et al.* 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 066101

# Investigation of stable high – index silicon surfaces by means of LEED pattern analysis <sup>\*</sup>

Jiang Jin-Long Li Wen-Jie Zhou Li Zhao Ru-Guang<sup>†</sup> Yang Wei-Sheng

( *National Key Laboratory for Artificial Microstructures and Mesoscopic Physics and Department of Physics , Peking University , Beijing 100871 , China* )

( Received 13 May 2002 ; revised manuscript received 12 June 2002 )

## Abstract

In the course of a systematic search for stable silicon surfaces , we have studied four stable high-index silicon surfaces , i. e. ,  $S(1,1,11)$  ,  $(108)$  ,  $(212)$  , and  $(15,1,17)$  , by analyzing their low-energy electron diffraction ( LEED ) patterns . The results show not only that all these surfaces are stable but also that  $S(15,1,17)$  is a major stable surface , whereas the rest three are minor stable surfaces , meaning that their unit cells consist of a nanometer facet of a major stable surface along with a double height step . In view of the periodic facet-step morphology of these minor stable surfaces , we suggest that these surfaces have the potential to be used as templates for growth of periodic nanowires of some suitable materials .

**Keywords** : silicon , high-index surfaces , vicinal surfaces , faceting , low energy electron diffraction ( LEED )

**PACC** : 6114H , 6820

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 19634010 ).

<sup>†</sup> Corresponding author .