第 46 卷 第 8 期 1997 年 8 月
1000-3290/97/46(8)/1535-08

物 理 学 报
ACTA PHYSICA SINICA

Vol. 46, No. 8, August, 1997
©1997 Chin. Phys. Soc.

用中能电子向前散射图像研究表面原子结构*

周旭冰 季 航 李晓卫 赵汝光[1)] 杨威生

(北京大学人工微结构和介观物理国家重点实验室,物理系,北京 100871)

(1997 年 1 月 16 日收到)

从中能电子向前散射产生的实空间图像研究了 Cu(111)1×1, Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-In 及 Ge(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-Ag 的表面结构. Cu(111)1×1 的图像不仅说明表面有三重旋转轴对称性,而且还表明 fcc 结构一直保持到最表面一层原子. Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-In 表面的图像说明 In 原子占据 T4 位,而不是 H3 位. Ge(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-Ag 的图像说明 HCT 模型是正确的. 这些成功的应用说明从中能电子向前散射图像可以直观而且快捷地获得表面结构类型的可靠信息,而无需类似于低能电子衍射(LEED)表面结构分析那样的复杂计算.

PACC: 6114H; 6114R; 6820

1 引 言

在中能电子衍射,高能俄歇电子衍射(AED),及 X 射线光电子衍射(XPED)实验中,电子从原子上作向前散射后的强度都会由于聚焦效应[1]而增大,从而出现向前散射峰和由这些峰构成的图样. 由于这类图样可视为实空间图[1,2,5]或全息图[1,6—10],从而有可能从它们简捷地得到表面原子结构的信息,致使许多学者致力于这方面的研究. 例如 Fadley, Saldin, Tong, Barton, Chambers 等做了大量理论方面的工作[1,2,4—11],而 Pan, Hochstrasser, Thevuthasan, Li 等在实验上也取得了一定的进展[3,12—15].

利用中能电子的这种产生图像常称为中能电子衍射图或 MEED 图[1—3],亦称 Kikuchi 图. 理论和实验都表明当电子能量大于 300—400 eV 时,原子对电子的散射以向前散射为主[11,12]. 中能电子的能量约为 300—2000 eV,当中能电子射入表面后,会在亚表层的原子上作背散射. 这些背散射电子又会在最表层的原子再被散射,包括向前散射. 按照向前散射的规律,在近邻原子连线方向上就会出现强的向前散射峰[4],这些峰就是表面的 MEED 图像的来源,据此可以推算表面原子排列及结构. 理论分析表明[6,8],背散射电子可视为参考波,表面原子对它的散射可视为物波,因此 MEED 图像可视为电子全息图. 这就决定了 MEED 与传统的低能电子衍射(LEED)相比,具有以下优点:1)可以直接反映表面的实空间结构;2)可以用来研究表面的短程序,即使表面无长程序;3)至少原则上讲从它可以直接得出原子模型[6,8],而用 LEED 则必需采取逐个模型尝试的方法(即

* 国家自然科学基金资助的课题.

1) 通讯联系人.

trial-and-error的方法).MEED的缺点则是精确度不如LEED高,但它可以较快判断出原子模型的类型,所以MEED方法对表面结构研究有重要意义.

本工作利用普通的LEED设备获取Cu(111)1×1,Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-In,和Ge(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-Ag表面的MEED图像,并利用它们对表面结构类型进行分析.

2 实 验

我们用的是Omicron透射式LEED设备,用实验室建造的由计算机控制的摄像系统采集图像及数据.荧光屏的张角为104°,样品架的转动装置可改变入射角,并可测量其角度,精度为0.5°,在平面图像中由中心(0°)到边上(52°)改变1°对应半径的变化是非线性的,是偏离中心角度的余弦函数.实验中,先获得LEED图像,之后固定样品位置,逐渐升高能量以得到MEED图像.MEED图背景很高,与结构有关的信息掩盖在背景之中,但可用入射角度不同的几幅图经处理来扣除背景[3].我们发现,当样品转到偏离正入射位置角度较大时(如大于10°)相应的MEED图质量较低,从中得不到什么表面结构的信息.如果转角过小,则又不利于背景的扣除.所以只有选择适当大小的转角(约为5°—7°)才会得到较好的结果.具体做法是:当得到清晰的LEED花样后,逐渐升高入射电子的能量.到200—300 eV左右LEED斑点逐渐模糊直至消失,继续升高能量至有最佳的MEED图.入射电子能量过低,向前散射不明显;能量过高,则背景太大,信噪比较低.合适的能量选择为700—900 eV,我们一般用750或850 eV.入射束强度对MEED图质量也有影响,我们通过调节入射电流,使图像的反差尽可能强.为了提高信噪比,所取图像都是10次取样平均的结果.在取第一幅图之后,转动样品,如先向上(或左)转5°—7°,再取第二幅MEED图,然后再向下(或右)转10°—14°,取第三幅MEED图.这样便得到三幅入射角度不同的MEED图.尽量保持三幅图背景的强度不变.对Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-In样品,正入射的一幅如图1(a)所示.

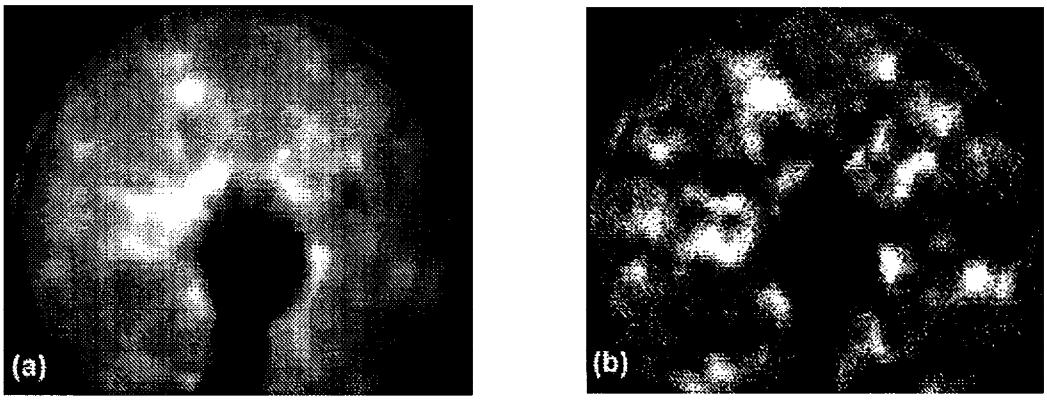
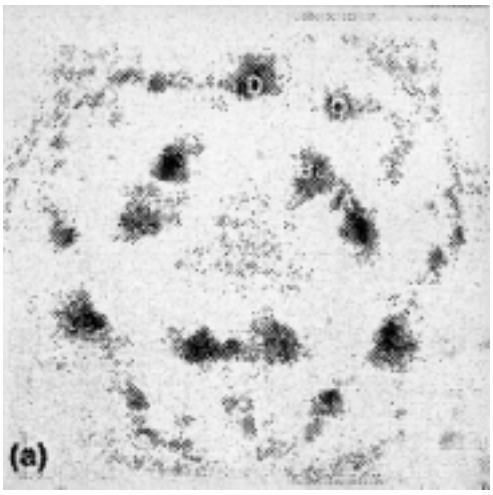


图1 Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-In表面的正入射MEED图 入射电子能量为750 eV;(a)为未扣除背景的原图;(b)为扣除背景后的图

从图 1(a)中我们很难看到什么表面结构信息,这是由于图 1(a)中有很强的由非弹性散射电子引起的背景.考虑到由于弹性散射所形成的 MEED 花样随样品的旋转在像平面上平行移动,而非弹性散射背景在 ±15°旋转范围内基本不变[3],为扣除背景我们比较三个图在接收屏上同一像素点的强度值,并找出其中的最小值,作为这一点的背景强度.然后,将最小值从该像素点值中减去.对所有的像素点逐一进行了这样的处理后,再将所得图像各像素点的强度归一化,这就得到如图 1(b)所示的扣除了背景的 MEED 图.该图很好地反映了 Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$) R30°-In 表面的三重轴对称性.对于正入射的图利用对称性可得到完整的 MEED 图.所得到 Cu(111)1×1, Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$) R30°-In 及 Ge(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)-Ag 的 MEED 图如图 2(a),图 3(a)及图 4(a)所示.



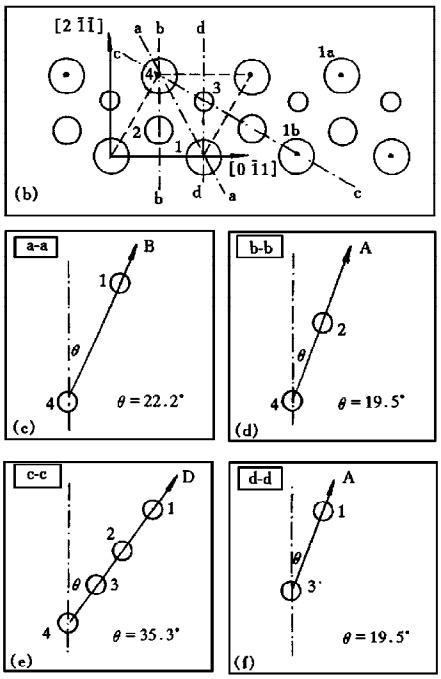


图 2　(a)为 Cu(111)1×1 表面正入射的 MEED 图,入射电子能量为 850 eV; (b)为 Cu(111)1×1 表面结构顶视图,fcc 结构,点线给出一些主要的向前散射的方向,圆圈旁或内的数字表示原子所在的层数.(c)—(d)为(b)中所示向前散射束 *a-a*, *b-b*, *c-c*, *d-d* 的向前散射角度与晶面法线夹角

3　实验结果与分析

3.1　Cu(111)1×1 样品表面

图 2(a)给出了一幅 Cu(111)1×1 表面的正入射 MEED 图.由图 2(a)中可以看到,在离中心(表面的法线方向)35°左右有三个强的斑点(D),构成一等边三角形,另外在距中心 20°左右(A)还有三个很强斑点,也构成一等边三角形.此外每个(A)斑两侧各有一个斑点(B),它们形成一六边形.所有这些斑点的形成可以从面心立方晶体 Cu(111)表面的原子

结构(见图 2(b))得到说明(见图 2(c)至图 2(f)).前面已经说过,入射电子在亚表层原子作背散射后,又会被较上层原子再次散射,在有关原子连线方向上形成向前散射峰.从无重构的 Cu(111)1×1 表面结构,由有关原子所在的层数及平面上的相对位置可以很容易地推算出在仪器可见范围内应该出现的较强的向前散射峰的角度及位置(见表 1).可以看出,实验图中各斑点的位置与表 1 预期的位置符合得很好,也与俄歇电子及光电子的实验结果及多次散射的理论计算结果[16]一致,从而既说明我们的实验方法是可靠的,也说明在 Cu(111)表面,原子的面心立方堆垛次序一直保持到最表面一层原子.

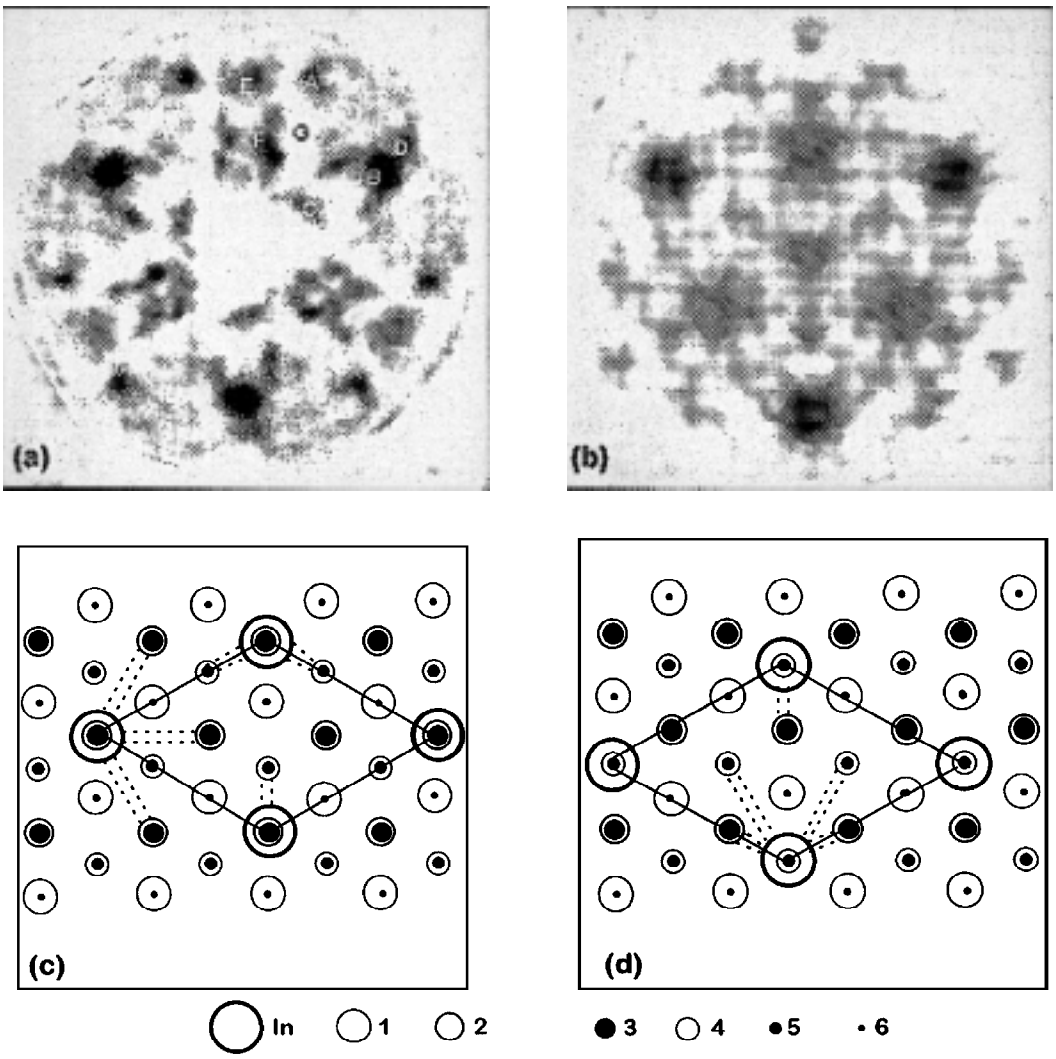


图 3 (a)为 Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-In 表面正入射 MEED 图,入射电子能量为 850 eV. A-G 标记的位置与表 2 及表 3 中标记的峰位对应;(b)为用 SSC 方法计算的该表面的 T4 模型的 MEED 图;(c)为 T4 模型顶视图;(d)为 H3 模型顶视图;(c)和(d)中的点线给出两种模型不同的向前散射方向;最底下一行中的数字表示所标定的圆表示的 Si 原子所在的层数,In 原子所在的层数为 0

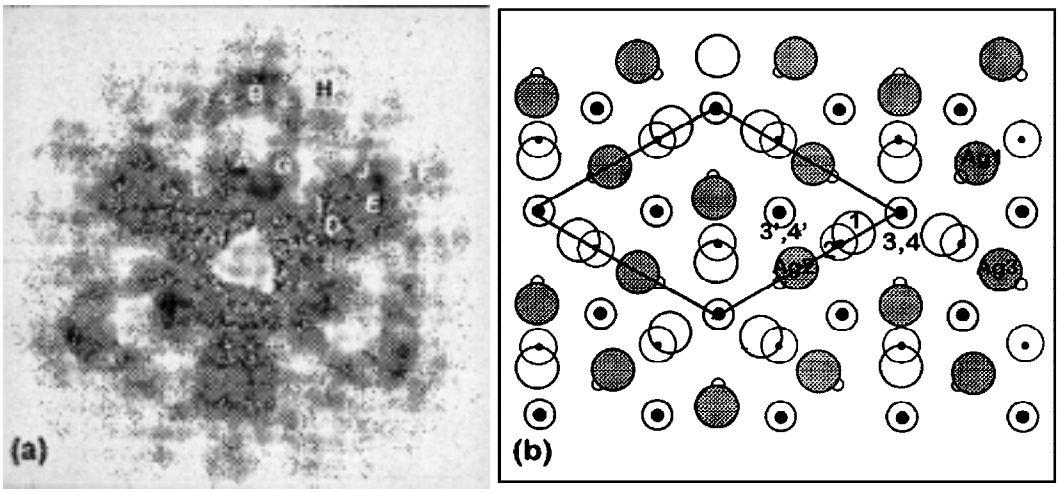


图 4　(a)为 Ge(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-Ag, 正入射 MEED 图, 入射电子能量为 850 eV; (b)为 HCT 模型顶视图. A—J 标记的位置与表 4 中计算位置对应

表 1　从 Cu(111)1×1 表面结构计算的向前散射束的角度

二次电子发射位置(所在层数)	散射原子位置(所在层数)	向前散射角度(与晶面法线夹角)/(°)	到中心距离(40 mm~52°)/mm	斑点标记
3	1	19.5	17.4	A
4	2	19.5	17.4	A
4	1	22.2	19.6	B
4	1a	39.2	32.2	C
2	1	35.3	29.4	D
3	2	35.3	29.4	D
3	1b	35.3	29.4	D

3.2　Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-In 表面

图 3(a)给出了一幅 Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-In 表面的正入射 MEED 图. 从图 3(a)中可以看到, 在距中心 35°, 20°—30°, 15°角附近都有很强的斑点, 且都呈三重对称分布.

在图 3(c)和图 3(d)中画出了 Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-In 的两种模型, 一种是 *T*4 位模型, 另一种是 *H*3 位模型[17,18]. *T*4 位即 In 原子位于第二层 Si 原子正上方的位置, *H*3 位即 In 原子位于第四层 Si 原子正上方的位置. 我们对 *T*4 位及 *H*3 位模型分别按照向前散射原理, 计算出向前散射峰出现的位置, 其结果列在表 2 及表 3. 结果表明对 *T*4 模型来说, 背散射电子被 In 原子向前散射后形成的峰应在图 3(a)中标 A, B 及 C 处, 只是对 B 峰来说计算值为 21°, 略小于实验值 24°. 最上面三层 Si 原子向前散射形成的峰则应在图 3(a)中标 D, E 及 F 处. 很明显这些峰的位置也与实验图相符. 所以说, *T*4 位模型与实验符合得很好. 由于在 *H*3 位模型中 Si 原子的结构与 *T*4 位模型中相同, 所以在 D, E 及 F 处应也有斑点. 但是, 不同的 In 原子位置使得在 B, C 处斑点不出现, 而应该在 G 处有斑点.

可是在实验图中 G 处却没有相应的斑点,这就是说 H3 位模型特有的向前散射峰与实验得到的图相差较大.值得注意的是 T4 位模型恰恰不产生 G 处的斑点.

为了更直观地比较,我们用单次散射集团模型(single scattering cluster model 缩写为 SSC)方法[1]模拟了 Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-In 的 T4 位模型(到第六层 Si 原子)对应的 MEED 图,如图 3(b).与实验图相比,二者非常相似,只是有些计算的斑点由于十分靠近而未能分开.

3.3 Ge(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-Ag 表面

Ge(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-Ag 表面的正入射 MEED 图如图 4(a)所示,从图中可以看到有两套近似六重对称的斑点(B,E 为一套,C,F 为另一套),但很明显 B 对应的角度略大于 E,C 对应的角度略大于 F.与图 2(a)Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-In 的 MEED 图明显不同.

文献[19]论述了 Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-Ag 的 HCT 模型的合理性,文献[20]认为 Ge(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-Ag 表面结构类似于 Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-Ag.Ge(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-Ag 的 HCT 模型如图 4(b)所示.我们用向前散射原理,算出了 Ge(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-Ag 的 HCT 模型所对应的向前散射峰的位置,其结果列在表 4.计算的散射峰位

表 2 从 Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)-In 表面的 T4 位模型计算的向前散射束的角度(T4 位的 In 原子与第一层 Si 原子的间距按 0.183 nm[18],Si 原子按体结构参数计算)

二次电子发射位置(所在层数)	散射原子位置(所在层数)	向前散射角度(与晶面法线夹角)/(°)	到中心距离(40 mm~52°)/mm	斑点标记
3	In	37	30.7	A
4	In	21	18.7	B
5	In	15	13.8	C
3	1	35	29.3	D
4	2	35	29.3	D
5	3	35	29.3	D
4	1	30	25.8	E
5	1	20	17.8	F

表 3 从 Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)-In 表面的 H3 位模型计算的向前散射束的角度(H3 位的 In 原子与第一层 Si 原子的间距按 0.10 nm(或 0.18 nm),Si 原子按体结构参数计算)

二次电子发射位置(所在层数)	散射原子位置(所在层数)	向前散射角度(与晶面法线夹角)/(°)	到中心距离(40 mm~52°)/mm	斑点标记
3	In	24(14)	21.0(13.0)	
4	In	33(20)	28.2(17.8)	
5	In	25(15)	21.8(13.8)	G
3	1	35	29.3	D
4	2	35	29.3	D
5	3	35	29.3	D
4	1	30	25.8	E
5	1	20	17.8	F

表 4　从 Ge(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)-Ag 表面的 HCT 模型计算的向前散射束的角度

二次电子发射位置(所在层数)	散射原子位置(所在层数)	向前散射角度(与晶面法线夹角)/(°)	到中心距离(40 mm～52°)/mm	斑点标记
2	Ag2	26	22.6	A
3	1	23	20.2	A
4	Ag2	31	26.5	B
4	2	35	29.3	B
3	Ag2	43	34.7	C
3	2	43	34.7	C
2	1	20	17.8	D
4	Ag1	24	21.0	E
3	Ag1	36	30.0	F
4′	1	25	21.8	G
3′	1	39	32.2	H
2	Ag3	38	31.5	H
4′	Ag2	19	17.0	I
3′	Ag2	28	24.2	J

置在图 4(a)中用字母 A—J 标出,其位置与实验图的斑点基本相符.特别是 B 与 E 及 C 与 F 所形成六边形的形状很好地反映出了 Ag 原子的分布特点,因此 MEED 的实验结果是支持 HCT 模型的.如果是 T4 位或 H3 位模型,其 MEED 图则明显不同于图 4(a).

4　结　　论

我们用中能电子向前散射的图像研究了 Cu(111)1×1, Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-In, 及 Ge(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-Ag 表面的结构.对 Cu(111)1×1 样品,实验结果原子堆垛的面心立方次序一直保持到最表层原子.对 Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-In, 认为其 T4 位模型更为合理.结果还说明 Ge(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$)R30°-Ag 表面的 HCT 模型与 MEED 图样非常相符.这些结果说明 MEED 对于表面分析确实是一个强有力的武器,而且因其计算较为简便,所以如能进一步提高图像质量,将会有十分广阔的应用前景.

[1] C. M. Wei, T. C. Zhao and S. Y. Tong, *Phys. Rev. Lett.*, **65**(1990), 2278.

[2] S. Thevuthasan, G. S. Herman, A. P. Kaduwela, R. S. Saiki, Y. J. Kim, W. Niemczura, M. burger and C. S. Fadley, *Phys. Rev. Lett.*, **67**(1991), 469.

[3] B. L. Maschhoff, J. M. Pan and T. E. Madey, *Surf. Sci.*, **259**(1991), 190.

[4] S. A. Chambers, I. M. Vitomirov and J. H. Weaver, *Phys. Rev.*, **B36**(1987), 3007.

[5] C. S. Fadley, *Prog. Surf. Sci.*, **16**(1984), 275.

[6] D. K. Saldin, P. L. de Andres, *Phys. Rev. Lett.*, **64**(1990), 1270.

[7] J. J. Barton, *Phys. Rev. Lett.*, **61**(1988), 1356.

[8] G. R. Harp, D. K. Saldin and B. P. Tonner, *Phys. Rev. Lett.*, **65**(1990), 1012.

[9] S. Y. Tong, C. M. Wei, T. C. Zhao, H. Huang and Hua Li, *Phys. Rev. Lett.*, **66**(1991), 60.

[10] S. Y. Tong, Hua Li and H. Huang, *Phys. Rev. Lett.*, **67**(1991), 3102.

[11] C. M. Wei, T. C. Zhao and S. Y. Tong, *Phys. Rev.*, **B43**(1991), 6354.

[12] J. M. Pan, B. L. Maschhoff, U. Diebold and T. E. Madey, *Surf. Sci.*, **291**(1993), 381.

[13] M. Hochstrasser, M. Zurkirch, E. Wetli, D. Pescia and M. Erbudak, *Phys. Rev.*, **B50**(1994), 17705.
[14] S. Thevuthasan, R. X. Ynzunza, E. D. Tober, C. S. Fadley, A. P. Kaduwela and M. A. Van Hove, *Phys. Rev. Lett.*, **70** (1993), 595.
[15] H. Li and B. P. Tonner, *Phys. Rev.*, **B37**(1988), 3959.
[16] X. D. Wang, Y. Chen, Z. L. Han, S. Y. Tong and B. P. Tonner, in: The Structure of Surface Ⅲ, eds. S. Y. Tong, M. A. Van Hove, K. Takayanagi and X. D. Xie (Springer-Verlage, Berling, Heidelberg, 1991), p. 65.
[17] J. M. Nicholls and B. Reihl, J. E. Northrup, *Phys. Rev.*, **B35**(1987), 4137.
[18] T. Hanada, H. Daimon and S. Ino, *Phys. Rev.*, **B51**(1995), 13320.
[19] J. F. Jia, R. G. Zhao and W. S. Yang, *Phys. Rev.*, **B48**(1993), 18109.
[20] M. Hammar, M. Gothelid, U. O. Karlsson and S. A. Flodstrom, *Phys. Rev.*, **B47**(1993), 15669.

INVESTIGATION OF THE ATOMIC STRUCTURE OF SURFACES BY MEANS OF FORWARD SCATTERING OF MEDIUM ENERGY ELECTRONS

ZHOU XU-BIN JI HANG LI XIAO-WEI ZHAO RU-GUANG YANG WEI-SHENG
(*State Key Laboratory for Artificial Microstructures and Mesoscopic Physics, Department of Physics, Peking University, Beijing* 100871)
(Received 16 January 1997)

ABSTRACT

The atomic structure of several surfaces has been investigated on the basis of the real space patterns formed by forward scattering of medium energy electrons from the surface. The images of the Cu(111) surface show not only that the surface has the three-fold symmetry but also that the fcc stacking sequence persists up to the topmost atomic layer. The images of the Si(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$) $R30°$-In surface support that In atoms occupy the T4 sites on the surface, rather than the $H3$ sites. In the case of Ge(111)($\sqrt{3}\times\sqrt{3}$) $R30°$-Ag surface the images indicate that the honeycomb-chained-triangle (HCT) model is correct. The success of these applications shows that reliable structural information of surfaces can be obtained quite straightforward by means of forward scattering of medium-energy electrons, instead of via complicated calculations such as involved in LEED crystallography.

PACC: 6114H; 6114R; 6820