

原子级制造专题

笼目结构表面的原子操纵及图形化研究

周贞如¹ 王婷婷¹ 范浩龙¹ 李燕¹ 郝小雨¹ 詹凌涛¹ 曹雄柏¹ 余钦泽¹

杨惠霞¹ 张腾¹ 张全震^{1*} 陈岚² 王业亮^{1*} 高鸿钧²

(1. 北京理工大学 集成电路与电子学院 北京 100081; 2. 中国科学院物理研究所 北京 100190)

Research on Atomic Manipulation and Patterning on Kagome Structure Surface

ZHOU Zhenru¹, WANG Tingting¹, FAN Haolong¹, LI Yan¹, HAO Xiaoyu¹, ZHAN Lingtao¹, CAO Xiongbei¹,
YU Qinze¹, YANG Huixia¹, ZHANG Teng¹, ZHANG Quanzhen^{1*}, CHEN Lan², WANG Yeliang^{1*}, GAO Hongjun²

(1. School of Integrated Circuits and Electronics, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China;

2. Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

Abstract Atomic manipulation technique plays a significant role in the controllable construction of novel quantum structures, the regulation of exotic physical properties, and the exploration of application prospects for new nano-electronic devices. Currently, most atomic manipulations are carried out on metal surfaces such as Cu(111) and Au(111), and on semiconductor surfaces such as Si and InAs. However, atomic manipulation in the field of Kagome structures has rarely been explored. In this research work, we have, for the first time, achieved precise manipulation of potassium (K) atoms and the construction of atomic patterns on the Sb surface of the Kagome KV_3Sb_5 through the ultra-high precision atomic manipulation technique of scanning tunneling microscopy (STM). By using the STM probe to controllably slide and push K atoms, we have overcome the interference caused by the potential energy fluctuations on the Sb surface to directional atomic movement, successfully migrated K atoms along the lattice basis vectors for single and continuous multiple lattice spacings, and constructed a regular “BIT” atomic pattern. In addition, the experimental results have shown that the anisotropic potential energy benchmark provided for K atoms by the charge density wave (CDW)-induced symmetry breaking on the Sb surface significantly improves the manipulation accuracy. This research not only expands the application scope of atomic manipulation technique and demonstrates the feasibility of STM for atomic-level manipulation on complex Kagome material surfaces, but also provides important experimental evidence for the directional design of future nano-electronic devices at the atomic scale.

Keywords Kagome structure, Charge density wave, Atomic manipulation, Atomic pattern, Scanning tunneling microscopy

摘要 原子操纵技术在新型量子结构可控构筑、新奇物性调控和探索新型纳电子器件等领域具有重要作用,应用前景广阔。目前,大多数原子操纵是在单质金属表面如 Cu(111)、Au(111)和半导体如 Si、InAs 等表面进行,而在更加复杂的表面,例如笼目(Kagome)结构表面的原子操纵技术却鲜有涉及。在本研究工作中,通过扫描隧道显微镜(STM)超高精度原子操纵技术,首次在笼目结构 KV_3Sb_5 的 Sb 表面实现了钾(K)原子的精确操控及其原子图案化构筑,操控 STM 探针可控地推动 K 原子,克服了 Sb 表面势能起伏对原子定向移动所造成的干扰,成功将 K 原子进行了单晶格和连续多晶格的精确迁移,并构建出规则的“BIT”原子图案。除此之外,实验表明,Sb 表面电荷密度波(CDW)诱导的对称性破缺,为 K 原子提供了各向异性的势

收稿日期: 2025-04-07

基金项目: 国家重点研发计划项目(2024YFA1207800; 2021YFA1400103; 2020YFA0308802; 2024YFA1611300); 国家自然科学基金项目(62471038; 62271048; 12304205; 92163206)

* 联系人: E-mail: quanzhen.zhang@bit.edu.cn; yeliang.wang@bit.edu.cn

能基准,显著提升了操纵精度。研究工作不仅拓展了原子操纵技术的应用范围,验证了STM在复杂笼目结构材料表面实现原子级操控的可行性,也为未来新型纳米电子器件在原子尺度的定向设计提供了重要的实验依据。

关键词 笼目结构 电荷密度波 原子操纵 原子图形化 扫描隧道显微镜

中图分类号:O485

文献标识码:A

doi: 10.13922/j.cnki.cjvst.202503023

原子操纵技术作为一种前沿的微观调控手段,在诸多关键领域扮演着至关重要的角色。在新型量子结构的可控构筑方面,它能够以原子级的精度对材料的微观结构进行设计与组装^[1-3],从而实现对量子态的精确调控,为量子计算、量子通信等量子技术的发展提供了坚实的研究基础^[4]。在新奇物性调控领域,原子操纵技术通过对材料中原子的精确排列和相互作用的调整,可以诱导出诸如拓扑绝缘态^[5-9]、量子自旋霍尔效应^[10]等非常规的物理现象,为凝聚态物理的研究开辟了新的方向。此外,在探索新型纳米电子器件应用前景方面,该技术使得在原子尺度上对电子输运性质进行定制成为可能,为开发具有更高性能、更低能耗的纳米电子器件^[11-13],如单原子晶体管、量子点器件等,提供了关键的技术支持,有望推动纳米电子学领域向更深层次和更广范围的发展。

基于扫描隧道显微镜(Scanning Tunneling Microscope, STM)的单原子操纵技术^[14-17],作为一种前沿的实验手段,近年来在多个研究领域取得了显著进展^[18]。该技术通过利用STM的高空间分辨率和精确的探针控制能力,能够在原子尺度上对物质进行精确的操作和组装。这不仅使得构筑原子级精确的结构成为可能,而且为研究人工晶格中的奇异量子态提供了直接的实验途径。目前STM原子操纵技术广泛应用于超导体^[19-21]、二维材料^[22-24]、半导体^[25-26]、及拓扑绝缘体^[27],用于实现天然材料中不存在的新型电子特性,如拓扑效应与多体效应^[28]等。

近期,笼目结构 AV_3Sb_5 ($A=K, Rb, Cs$)材料因其独特的三角晶格结构和丰富的物理现象,如狄拉克点^[29]、范霍夫奇点^[30]和平带^[31]等,而备受关注。这些特性使得笼目结构在研究量子相变^[32]、拓扑态^[33]和强关联电子行为^[34]等方面具有巨大的潜力,为深入探索新型量子特性和电子器件搭建了一个极具潜力的理想平台。这类材料以钒(V)原子构成笼目晶格层,锑(Sb)原子填充六边形空隙,碱金属(K、Rb、Cs)作为层间间隔,形成准二维层状结构^[33]。 AV_3Sb_5 的结构特性以笼目晶格阻挫和层状堆叠为核心,通过几何对称性和弱层间耦合,为强关联电

子态、超导与CDW的共存以及拓扑非平庸性提供了独特平台^[35-39]。更重要的是,碱金属作为层间间隔,可以通过调节层间距离,从而进一步影响电子关联效应和晶格畸变,或者通过电荷转移调控费米面位置,影响超导转变温度与范霍夫奇点等。因此,对碱金属原子进行原子操纵对调控层间耦合,进而改变笼目晶格的能带结构,研究CDW和超导性等新奇电子特性有重要意义^[40]。然而,针对笼目结构材料中碱金属原子的原子操纵技术却鲜有涉及,这不仅限制了对笼目结构微观物理机制的深入理解,也阻碍了其在新型量子器件和高性能材料研发中的应用。

在本研究工作中,聚焦于 KV_3Sb_5 这一典型的笼目结构材料,利用STM单原子操纵技术,在Sb表面对K原子进行可控操纵,成功将K原子沿晶格基矢方向进行了单晶格和连续多晶格间迁移,并通过对多个K原子的连续可控平移操纵,成功构筑了原子级图案“BIT”,为未来新型纳米电子器件的设计和制造提供了重要的实验基础。

1 实验方法

本文研究的材料是采用自熔剂法所制备的单晶 KV_3Sb_5 。具体的生长方法如下:采用改进的自熔剂法,以金属钾锭(Alfa, 纯度99.95%)、钒粉(Alfa, 纯度99.9%)和锑粒(Alfa, 纯度99.999%)为原料合成 KV_3Sb_5 单晶。将混合原料置于氧化铝坩埚中,在超高真空环境下密封于石英管内。随后将密封石英管加热至1000℃,并恒温24 h,再以每小时2℃的速率缓慢冷却。最终通过离心法分离熔融盐获得单晶。除密封和反应步骤外,所有制备过程均在氩气手套箱中完成,以防止钾与空气及水反应。所得 KV_3Sb_5 单晶尺寸超过 $2\text{ mm} \times 2\text{ mm} \times 0.2\text{ mm}$,且在空气中性质稳定。

扫描隧道显微镜/谱(STM/STS)测试使用Scientia Omicron公司POLAR-STM型超高真空低温(温度为4.5 K,真空度约 5×10^{-11} Torr)系统完成。实验前将 KV_3Sb_5 单晶在超高真空低温环境下解理,并立即转移至STM腔中。实验温度为4 K,采用电

化学腐蚀的钨针尖作为探针并接地, 通过石墨烯晶格和 Si(111)-(7×7) 表面结构进行针尖校准, 实验中 STM 图均为恒流模式下测得。

2 实验结果与讨论

2.1 KV_3Sb_5 的晶体结构

在本研究工作中, 首先采用 STM 技术, 对 KV_3Sb_5 晶体结构进行了原子分辨率表征。 KV_3Sb_5 作为具有本征笼目晶格的层状材料, 由 K 原子层和 VSb 层交替堆叠而成, 具有六方对称性, 其晶体结构如图 1(a) 所示。在每个 VSb 层中, V 原子通过共边三角形网络, 形成二维笼目晶格。其中, 面内 Sb_1 原子正好位于笼目结构六边形的中心, 面外的 Sb_2 原子位于笼目晶格三角形中心的正上方^[41-43]。 Sb 原子是笼目结构的基底组成部分, 与周围的 V 和 Sb 原子通过强共价键结合, 具有极高的稳定性。而 K 原子通过较弱的范德华力吸附在 Sb 表面。由于 V 和 Sb 原子之间的化学键更强, K 原子与 VSb 层之间的结合较弱, 易发生剥离, 导致实验观测表面主要呈现为 Sb_2 终止面或 K 原子, 如图 1(b) 所示。

图 1(c) 展示了 Sb_2 表面在温度 4.5 K, 样品偏压

为 $V_b = 0.05$ V 时, 获得的具有原子分辨率的 STM 图像。除此之外, 还存在一个 $2a_0 \times 2a_0$ 的 CDW 超晶格, 具有反大卫之星(Inverse Star of David, ISOD)构型, 表现为原胞内电子态密度的三重反对称分布。之前实验结果表明, 在低温下, KV_3Sb_5 的旋转对称性会自发破缺^[43]。处于低温时, 旋转对称性被破坏, $2a_0 \times 2a_0$ 的 CDW 在不同方向的强度不同。图 1(d) 中, 将 Sb_2 表面的三个晶格基矢分别标为 a_1 、 a_2 、 a_3 。在之前的研究工作中, 发现在 4.5 K 温度时, 在 Sb_2 表面 $2a_0 \times 2a_0$ 超晶格上会叠加额外的单向电子态条纹^[43]。这导致三个 CDW 调制波矢强度不再相等, 电子会自发形成某个方向上的优势排列, 形成电子向列相。调制波矢强度的电子向列相特征使得表面势能不再均匀分布, 而会让某一基矢方向上的电子更集中或更稀疏, 某一基矢方向上的势阱更深或更浅, 从而形成空间上的“势能通道”或“势能壁垒”。在这种表面势能各向异性的环境下, K 原子倾向于在某些特定的位置吸附或移动, 为 K 原子的固定和移动提供了定位基准。在实验中, 这种笼目结构有利于实现对 K 原子位置的精确操控, 可以设计和实现复杂的晶格结构, 并精确控制其几何性质。

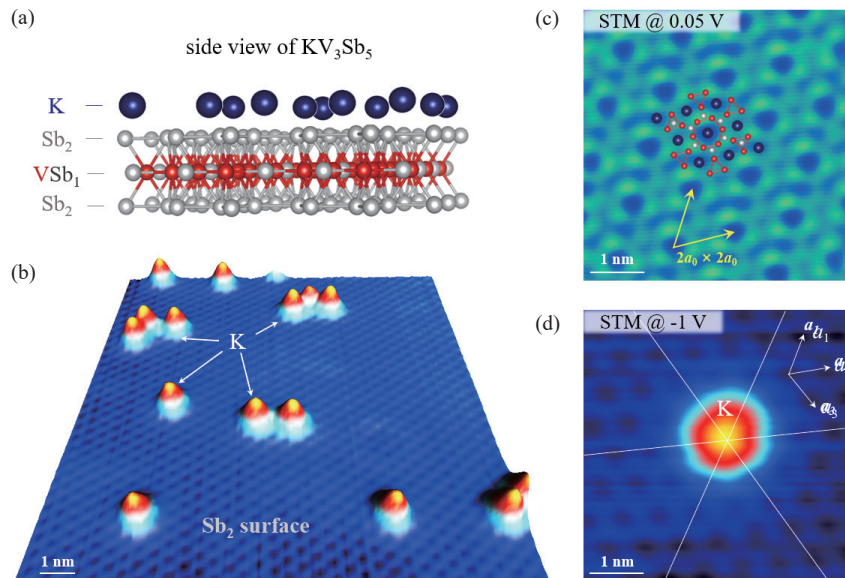


图1 KV_3Sb_5 的晶体结构。(a) KV_3Sb_5 的晶体结构示意图: 由钾(K)层、锑(Sb_2)层和钒锑(VSb_1)层交替堆叠形成的具有六方对称的晶体结构, (b) K 原子在 Sb_2 层表面的 STM 图, (c) 具有原子分辨率的干净 Sb_2 表面本征 STM 图像, 具有 $2a_0 \times 2a_0$ 的超晶格结构, (d) K 原子被吸附在 Sb_2 表面晶格基矢(a_1 、 a_2 、 a_3)的交点位置的 STM 图

Fig. 1 Crystal structure of KV_3Sb_5 . (a) Schematic diagram of the crystal structure of KV_3Sb_5 : exhibiting alternate stacking of K layers, VSb_1 and Sb_2 slabs with the hexagonal symmetry, (b) STM image of K atoms on the surface of the Sb_2 layer, (c) Intrinsic STM image of a clean Sb_2 surface with atomic resolution, exhibiting a superlattice structure of $2a_0 \times 2a_0$, (d) STM image of K atoms adsorbed at the intersection positions of the lattice basis vectors (a_1 , a_2 , a_3) on Sb_2 surface

图 1(b)展示了 Sb_2 表面上 K 原子的分布情况。在之前的研究工作中,发现在理想晶格结构中, K 原子呈现出规则六边形晶格结构排列^[43]。然而在解理过程中,由于 K 原子是通过较弱的范德华力吸附在 Sb 表面,发生断裂后, K 原子失去了上下层配位,易发生位移、重构,形成非周期排列。部分 K 原子会局域聚集或偏移至相邻晶格空位处,形成某些区域的局域密堆积结构,这种结构也表现出局域电子态尖峰^[44]。图 1(d)是 K 原子终止面的原子分辨 STM 图像。从图中可以看出, K 原子被吸附在 Sb_2 表面晶格基矢交点位置,形成与 CDW 超晶格相耦合的吸附周期阵列。这表明,通过精确控制 K 原子的位置,可以在 KV_3Sb_5 材料表面实现对原子结构的精确操纵,为研究笼目结构的物理性质和潜在应用提供了新的实验平台。

2.2 KV_3Sb_5 中 K 原子操纵

由于 K 原子通过较弱的范德华力吸附在 Sb 表面,这种相互作用所形成的键合能处于较低水平,使得 K 原子在受到外力作用时表现出较高的迁移活性。特别是,STM 探针可以提供精确且可控的外力作用,可以使 K 原子能够较为容易地实现移动^[45]。这一特性为在原子尺度上对 K 原子进行操控和精确排列提供了有利条件。因此,在本研究工作中,借助 STM 探针,精准地对 Sb_2 表面的钾(K)原子实施了原子级可控操纵。

在 STM 横向操纵技术中,通常存在三种主要的操纵模式,即拉(Pulling)、推(Pushing)以及滑(Sliding)。这三种模式各自具有独特的操作原理和应用场景,为原子级别的精确操纵提供了多样化的手段。在本实验研究中,为了深入探究 KV_3Sb_5 材料中 K 原子在笼目结构表面上的操纵特性,有针对性地选取并实施了滑动(Sliding)和推动(Pushing)这两种横向操纵方式。通过对比这两种操纵方式在实验过程中的具体表现以及对 K 原子位置移动的影响,旨在更全面地理解 K 原子在笼目结构表面上的动力学行为。

首先运用滑动(Sliding)的横向原子操纵模式:在横向操纵单个原子的过程中,STM 探针通过极强的短程吸引力使原子能够持续克服表面扩散势垒,当 STM 探针移动时,可以使被操纵原子跟随 STM 探针在基底表面连续移动^[46]。在滑动(Sliding)模式下,针尖与被操纵原子间距逐渐减小,使隧道电阻

达到极低水平^[47]。当针尖逐渐接近被操纵原子时(间距在 0.3~0.4 nm),由于此时两者处于强吸引力阶段,因此被操纵原子克服基底表面势垒,会向针尖发生跳跃,此时原子在基底上会随着针尖平滑移动。当操纵结束后,迅速增大针尖与被操纵原子间距,两者之间的强吸引力消失,原子将稳定地停留在基底表面。因此,在横向滑动操纵模式中,针尖通过强吸引力使得原子能够跨越初始势垒,在基底表面连续平滑移动。

图 2 展示了在 Sb_2 表面利用 STM 探针对 K 原子进行滑动操纵的过程。在滑动操纵过程中,首先,选定被操纵的 K 原子,标记起始位置,如图 2(a)所示;其次,通过增大 STM 的扫描电流和减小施加的偏置电压($I=300\text{ pA}$, $V_b=-0.10\text{ V}$),使 STM 探针垂直接近 K 原子, K 原子由于受到探针对其的局域相互作用力而将跟随 STM 探针扫描过程而滑动,如图 2(b)所示;当 STM 探针到达指定位置后,通过减小扫描电流($I=10\text{ pA}$, $V_b=-0.10\text{ V}$)的方式,使 STM 探针垂直远离 K 原子,最终完成对 K 原子的横向滑动操纵,如图 2(c)所示。这一过程清晰地展示了通过精确控制 STM 的操作参数,实现了对 K 原子位置的横向平移操纵,证明了利用 STM 原子操纵技术对 KV_3Sb_5 材料 Sb_2 表面的钾(K)原子进行滑动横向操纵的可行性。

横向滑动原子操纵技术作为一种先进的原子操纵手段,已经在微观尺度上展现出了较高的操控精度,为原子级别的材料设计和研究提供了有力的工具。然而,该技术在实际应用过程中存在一些局限性。首先,在滑动横向原子操纵过程中,被操纵的原子需要跟随针尖的扫描路径进行移动。当针尖以恒流模式进行扫描时,被操纵原子会随着针尖的移动而进行周期性的往复运动。这种运动方式虽然在一定程度上可以实现原子的操纵,但由于被操纵原子的运动是被动跟随针尖的扫描路径,其精确性受到了限制。其次,横向滑动原子操纵技术在半导体材料中的应用效果大打折扣。半导体材料的表面结构复杂,存在表面重构和悬挂键等情况。这些微观结构特征导致半导体材料表面的势能面起伏很大。在这种复杂的势能面环境下,被操纵原子在表面运动时会面临很高的势垒。由于势垒的存在,被操纵原子往往难以精确地移动到指定位置,也无法在针尖的诱导下持续进行定向运动^[48]。

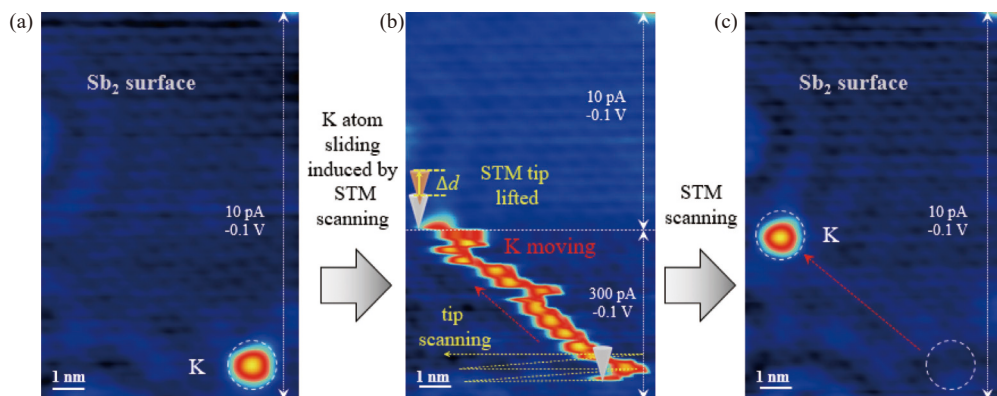


图2 利用 STM 探针横向滑动原子操纵技术, 实现 Sb 面上单个 K 原子操纵。(a) K 原子在 Sb₂ 表面初始位置的 STM 图像, (b) STM 探针在 Sb₂ 面上对 K 原子横向滑动操纵过程的 STM 图, K 原子跟随 STM 探针进行周期性往复运动。STM 图上半部分扫图参数为 $I = 10 \text{ pA}$, $V_b = -0.10 \text{ V}$, STM 图下半部分扫图参数为 $I = 300 \text{ pA}$, $V_b = -0.10 \text{ V}$, (c) 经过 STM 探针横向滑动操纵过程后, K 原子在 Sb₂ 表面的最终位置的 STM 图像

Fig. 2 Single K atom manipulation on Sb₂ surface using STM probe lateral sliding atom manipulation technique. (a) STM image of the initial position of K atom on Sb₂ surface, (b) STM image of the lateral sliding manipulation process of K atom on Sb₂ surface by STM probe, where the K atom follows the STM probe for periodic reciprocating motion. The scanning parameters for the upper part of the STM image are $I = 10 \text{ pA}$, $V_b = -0.10 \text{ V}$, and for the lower part are $I = 300 \text{ pA}$, $V_b = -0.10 \text{ V}$, (c) STM image of the final position of K atom on Sb₂ surface after the lateral sliding manipulation process by STM probe

为了更好地实现 Sb₂ 面上的 K 原子操纵, 提高操纵的精确性, 本实验改进了横向操纵的方法, 运用推动(Pushing)的方法对 K 原子进行超高精度原子操纵。推动法原子操纵是指通过 STM 探针与 K 原子之间的排斥力来使 K 原子在基底表面发生可控定向移动, 其移动距离和方向可通过精确控制 STM 探针的移动距离和方向来实现。在 Pushing 模式下, 针尖逐渐靠近被操纵原子, 当针尖与被操纵原子间距足够小时($<0.3 \text{ nm}$), 针尖与被操纵原子的电子云发生重叠, 原子间相互作用力由长程吸引力变为短程排斥力, 原子在针尖排斥力的作用下被推动前进, 将在基底表面以“跳跃”的方式移动。具体操纵方法是: 首先, 将 STM 探针精确放置在目标 K 原子的旁边。通过调整 STM 的扫描电流和偏置电压, 使探针垂直接近 K 原子。具体操作为增大 STM 的扫描电流并减小施加的偏置电压, 从而减小探针与 K 原子之间的距离, 为后续的操纵过程做好准备。然后, 缓慢地将 STM 探针向 K 原子方向进行横向移动。在此过程中, 控制探针的移动速度为 1 nm/s , 以确保操纵过程的稳定性和精确性。当 STM 探针与 K 原子之间的排斥力超过 K 原子与 Sb₂ 表面的吸附势垒时, K 原子将脱离其当前位置, 并随着 STM 探针向相同的方向移动。在横向推动原子操纵过程中, K 原子的移动距离和方向完全与

STM 探针的移动距离和方向一致, 从而实现了 K 原子的精确操纵。最后, 当 K 原子被移动到预定位置后, 通过调整 STM 的扫描电流或偏置电压, 使探针远离 K 原子。具体操作为减小 STM 的扫描电流或增大施加的偏置电压, 从而减小探针与 K 原子之间的相互作用力, 使 K 原子稳定在新的位置。此时, K 原子已被成功移动到指定位置, 完成了整个 K 原子横向推动的原子操纵过程。

图 3 展示了实验中运用 STM 探针横向推动的方法对 K 原子进行超高精度原子操纵的过程。首先, 通过控制 STM 探针移动单个晶格长度, 成功实现了单个 K 原子在三个晶格方向上以单个晶格精度(约 $5.5 \text{ \AA}$)的原子位置移动, 如图 3(a)-(d)所示。这一结果表明, STM 探针横向推动法能够以极高的精度操纵单个原子, 使其在基底表面上的特定位置进行精确位移。除了单晶格精度的操纵能力, STM 探针横向推动法还能够实现单个 K 原子的可控定向连续多晶格移动。通过控制 STM 探针连续移动多个晶格长度, 成功实现了单个 K 原子在基底表面上的连续多晶格移动(约 2 nm), 如图 3(e)-(g)所示。在此过程中, K 原子的移动距离和方向完全与 STM 探针的横向移动距离和方向一致。

STM 探针横向推动法不仅能够实现高精度的原子位置操纵, 还能够实现单个原子的长距离定向

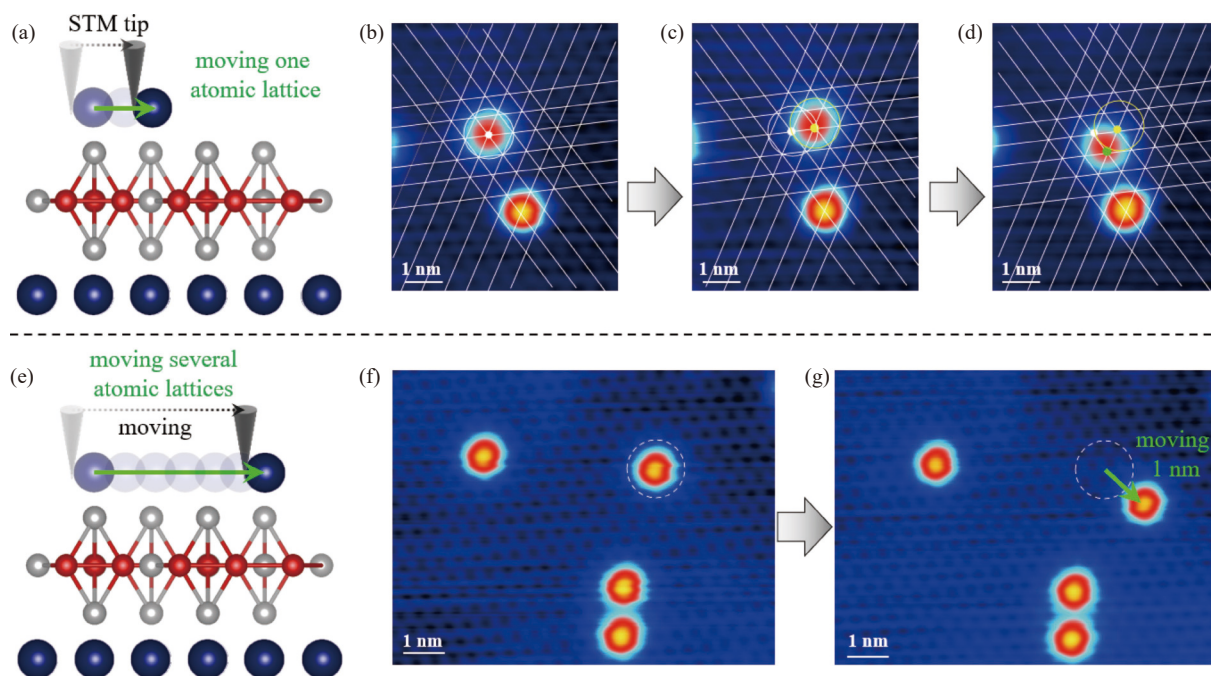


图3 利用 STM 探针横向推动的方法对 K 原子进行超高精度原子操纵。(a)利用 STM 探针在相邻 Sb 晶格间移动 K 原子示意图, (b)-(d)利用 STM 探针在不同晶格方向上以单个晶格精度(约 5.5 Å)移动 K 原子过程的 STM 图, (e)利用 STM 探针在多晶格间(约 2 nm)移动 K 原子的示意图, (f), (g)利用 STM 探针在多晶格之间移动 K 原子过程的 STM 图。在此过程中, K 原子的移动距离和方向完全与 STM 探针的横向移动距离和方向一致

Fig. 3 Ultrahigh-precision atomic manipulation of K atoms using the lateral pushing method with an STM probe. (a) Schematic illustration of moving a K atom between adjacent Sb lattice sites using an STM probe, (b)-(d) STM images showing the process of moving a K atom with single-lattice precision (about 5.5 Å) in different lattice directions using an STM probe, (e) Schematic illustration of moving a K atom over multiple lattice sites (about 2 nm) using an STM probe, (f), (g) STM images showing the process of moving a K atom over multiple lattice sites using an STM probe. In this process, the distance and direction of the K atom's movement are completely consistent with the lateral movement distance and direction of the STM probe

移动,具有良好的可控性和稳定性。通过 STM 探针横向推动法实现了单个 K 原子的超高精度操纵,展示了该方法在单晶格精度的原子位置调整和可控定向连续移动方面的优势。在滑动模式下,针尖与被操纵原子间的吸引力较弱,在移动过程中往往依赖于基底表面势能滑动,当针尖路径与晶格方向不重合时,原子会“寻找最优路径”滑动到能量最低点,易脱离针尖的弱相互吸引而偏离原预设运动轨迹,在移动过程中会存在移动位置不精确,无法跨晶格移动的问题。而推动模式是利用短程排斥力推动 K 原子在基底表面实现间断跳跃式的运动,因此,相较于滑动模式,推动模式无需持续克服表面摩擦势垒,瞬间释放能量即可完成操纵,可快速定位单个原子到晶格吸附位具有更精准可控的操纵优势,实验过程中操纵更为简便可重复操纵。在 STM 构建原子级人工结构、批量移动原子时,推动模式是更优选择。

STM 探针横向推动法作为一种先进的原子操纵技术,为实现原子级别的图案构造提供了一种高效且可靠的方法。进一步,作者以这种 STM 探针横向推动法的原子操纵技术为基础,利用 STM 探针在 Sb_2 表面精确横向推动多个 K 原子,成功构建了“BIT”纳米级图案,其构建过程如图 4(a)-(f)所示。其具体步骤如下:首先,将 STM 针尖定位在目标 K 原子旁边,通过施加适当的偏置电压和隧穿电流,使探针垂直接近 K 原子,然后通过精确控制 STM 探针的移动速度和路径,实现目标原子的可控定向移动。每次移动后,重新扫描该区域,确认原子的新位置,确保每次操纵的准确性和可靠性。然后,通过重复上述步骤,逐步将多个 K 原子移动到预定位置,最终在 Sb_2 表面上构建出“BIT”图案,如图 4(f)。

在 STM 探针横向推动法对 K 原子进行定向连续多晶格移动的过程中, K 原子在基底表面的移动

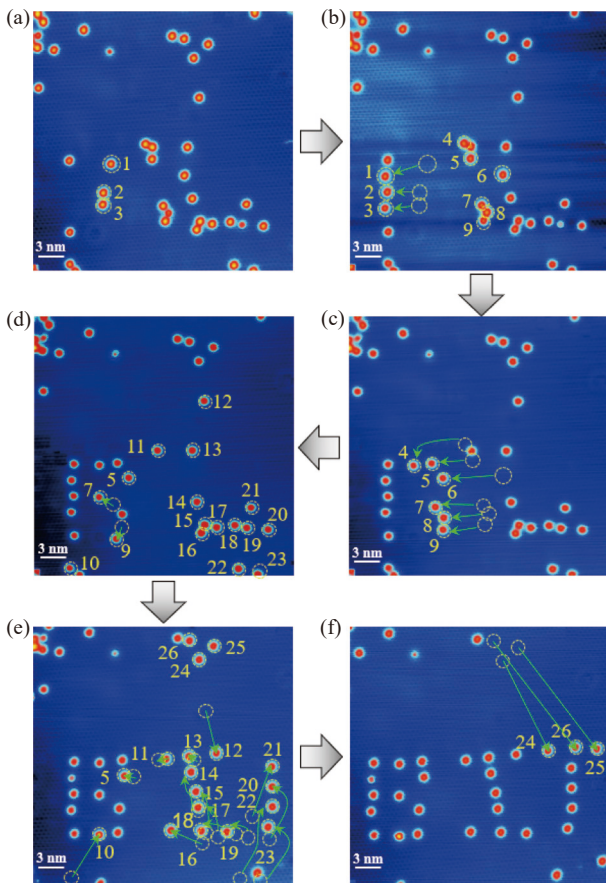


图4 利用 STM 探针原子操纵技术实现特定的原子图案。(a)-(f)以 STM 探针横向推动法的原子操纵技术为基础,利用 STM 探针在 Sb_2 表面精确横向推动多个 K 原子,成功构建了“BIT”纳米级图案

Fig. 4 Achieving specific atomic patterns using STM probe atomic manipulation techniques. (a)-(f) Based on the atomic manipulation technique of lateral pushing with an STM probe, multiple K atoms were precisely laterally pushed on the Sb_2 surface using an STM probe, successfully constructing a “BIT” nanoscale pattern

路径并非始终顺畅。由于基底表面的复杂性, K 原子在移动过程中可能会遇到多种能量势垒和物理障碍。这些势垒和障碍可能源自基底表面的不均匀性或 K 原子与基底之间的相互作用力。这些因素共同作用,增加了操纵过程的复杂性和不确定性。因此,为了克服这些问题,确保 K 原子能够按照预定路径移动,需要精确控制 STM 探针的移动路径、速度以及 STM 探针与 K 原子之间相互作用力,以确保 K 原子在移动过程中能够平稳地跨越能量势垒,避免因外力干扰而偏离预定轨道,实现其高效、准确的移动。

在用 STM 探针横向推动法原子操纵技术粗略

构筑“BIT”图案后,为了进一步优化图案的精确度,采用了单晶格精度的调整方法,通过精确控制 STM 探针的移动路径和速度,对 K 原子的位置进行了微调。每次调整的精度达到了单个晶格的水平(约 5.5 Å),确保每个 K 原子都能精确地放置在预定的晶格位置上。在调整过程中,利用高分辨率的 STM 成像技术实时监测 K 原子的位置变化。通过对比调整前后的 STM 图像,能够及时发现并纠正任何微小的偏差,确保每个 K 原子的位置完全符合设计要求。通过高精度调整和修饰,成功构建了完美的“BIT”图案,最终的 STM 图像如图 5(a)-(d)所示。该图案的构建过程不仅展示了 STM 探针横向推动法的高精度和高控制力,还证明了该技术在纳米尺度图案构造中的可行性和可靠性。

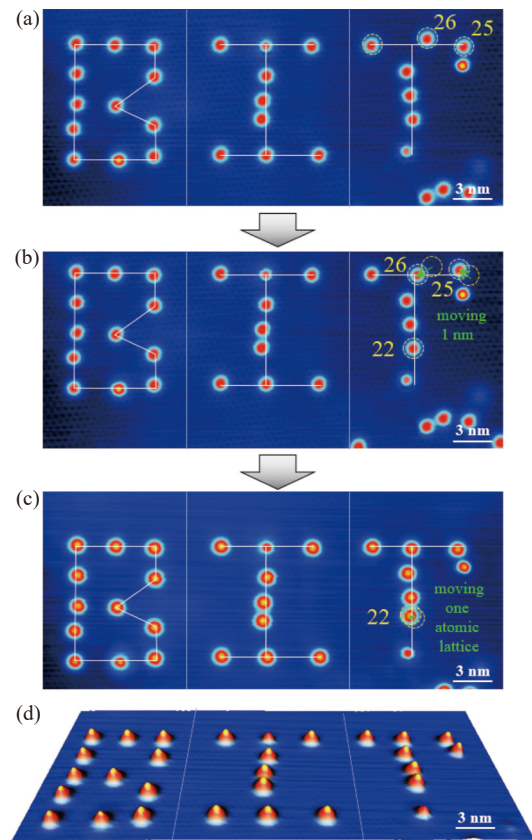


图5 利用 STM 探针精确调整 K 原子位置,构筑完美的“BIT”图案。(a)-(d)STM 图展示了对已粗略构筑的“BIT”图案进行单晶格精度的调整,最终得到完美的“BIT”图案的过程

Fig. 5 Utilizing STM probe to precisely adjust the positions of K atoms to construct a perfect “BIT” pattern. (a)-(d) STM images of the process of adjusting the roughly constructed “BIT” pattern with single-lattice precision to ultimately achieve a perfect “BIT” pattern

3 结论和展望

本研究通过扫描隧道显微镜(STM)原子操纵技术,对 KV_3Sb_5 笼目结构中Sb表面上的K原子进行了超高精度原子操纵和图形化构造。通过STM横向滑动的方法,实现了K原子在Sb表面的可控操纵和平移。进一步,利用STM探针横向推动的原子操纵方法,在Sb表面上实现了单晶格精度(约5.5 Å)和多晶格间(约2 nm)的K原子操纵,并通过精确控制多个K原子的位置,可控横向平移数十纳米,成功构建了“BIT”图案。这一成果不仅展示了STM技术在原子级操纵中的精确性,还为纳米图案化和纳米器件的制造提供了重要的实验基础。

本研究工作不仅验证了STM技术在原子级操纵中的强大能力,还为纳米图案化和纳米器件的制造提供了新的思路。通过精确控制单个原子的位置,期望能够在纳米尺度上设计和构建复杂的图案和结构。这一技术的发展将为量子计算、纳米电子学和分子电子学等提供了坚实的技术基础。

参 考 文 献

- [1] Simmons M Y, Schofield S R, O'Brien J L, et al. Towards the atomic-scale fabrication of a silicon-based solid state quantum computer[J]. *Surface Science*, 2003, 532-535: 1209-1218
- [2] Scappucci G, Capellini G, Lee W C T, et al. Atomic-scale patterning of hydrogen terminated Ge(001) by scanning tunneling microscopy[J]. *Nanotechnology*, 2009, 20(49): 495302
- [3] Scappucci G, Capellini G, Lee W C T, et al. Ultradense phosphorus in germanium delta-doped layers[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 94(16): 162106
- [4] Li Q L, Li X X, Miao B F, et al. Kondo-free mirages in elliptical quantum corrals[J]. *Nature Communications*, 2020, 11(1): 1400
- [5] Gomes K K, Mar W, Ko W, et al. Designer Dirac fermions and topological phases in molecular graphene[J]. *Nature*, 2012, 483(7389): 306-310
- [6] Slot M R, Gardenier T S, Jacobse P H, et al. Experimental realization and characterization of an electronic Lieb lattice[J]. *Nature Physics*, 2017, 13(7): 672-676
- [7] Kempkes S N, Slot M R, van Den Broeke J J, et al. Robust zero-energy modes in an electronic higher-order topological insulator[J]. *Nature Materials*, 2019, 18(12): 1292-1297
- [8] Freeney S E, Van den Broeke J J, Harsveld Van Der Veen A J J, et al. Edge-dependent topology in Kekulé lattices[J]. *Physical Review Letters*, 2020, 124(23): 236404
- [9] Kempkes S N, Slot M R, Freeney S E, et al. Design and characterization of electrons in a fractal geometry[J]. *Nature Physics*, 2019, 15(2): 127-131
- [10] Zhu S Y, Shao Y, Wang E, et al. Evidence of topological edge states in buckled antimonene monolayers[J]. *Nano Letters*, 2019, 19(9): 6323-6329
- [11] Feng M, Guo X F, Lin X, et al. Stable, reproducible nanorecording on rotaxane thin films[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2005, 127(44): 15338-15339
- [12] Kalf F E, Rebergen M P, Fahrenfort E, et al. A kilobyte rewritable atomic memory[J]. *Nature Nanotechnology*, 2016, 11(11): 926-929
- [13] Moon C R, Mattos L S, Foster B K, et al. Quantum holographic encoding in a two-dimensional electron gas[J]. *Nature Nanotechnology*, 2009, 4(3): 167-172
- [14] Eigler D M, Schweizer E K. Positioning single atoms with a scanning tunnelling microscope[J]. *Nature*, 1990, 344(6266): 524-526
- [15] Eigler D M, Lutz C P, Rudge W E. An atomic switch realized with the scanning tunnelling microscope[J]. *Nature*, 1991, 352(6336): 600-603
- [16] Strosio J A, Eigler D M. Atomic and molecular manipulation with the scanning tunneling microscope[J]. *Science*, 1991, 254(5036): 1319-1326
- [17] Ternes M, Lutz C P, Hirjibehedin C F, et al. The force needed to move an atom on a surface[J]. *Science*, 2008, 319(5866): 1066-1069
- [18] Li Y A, Wu D, Wang D L, et al. Investigation of artificial quantum structures constructed by atom manipulation[J]. *Acta Physica Sinica*, 2021, 70(2): 020701 (李宇昂, 吴迪, 王栋立, 等. 基于原子操纵技术的人工量子结构研究 [J]. *物理学报*, 2021, 70(2): 020701 (in Chinese))
- [19] Kim H, Palacio-Morales A, Posske T, et al. Toward tailoring Majorana bound states in artificially constructed magnetic atom chains on elemental superconductors[J]. *Science Advances*, 2018, 4(5): eaar5251
- [20] Van der Lit J, Jacobse P H, Vanmaekelbergh D, et al. Bending and buckling of narrow armchair graphene nanoribbons via STM manipulation[J]. *New Journal of Physics*, 2015, 17(5): 053013
- [21] Liebhaber E, Rütten L M, Reecht G, et al. Quantum spins and hybridization in artificially-constructed chains of magnetic adatoms on a superconductor[J]. *Nature Communications*, 2022, 13(1): 2160
- [22] González-Herrero H, Gómez-Rodríguez J M, Mallet P, et al. Atomic-scale control of graphene magnetism by using

- hydrogen atoms[J]. *Science*, 2016, 352(6284): 437–441
- [23] Wyrick J, Natterer F D, Zhao Y, et al. Tomography of a probe potential using atomic sensors on graphene[J]. *ACS Nano*, 2016, 10(12): 10698–10705
- [24] Cortés-del Río E, Mallet P, González-Herrero H, et al. Quantum confinement of Dirac quasiparticles in graphene patterned with sub-nanometer precision[J]. *Advanced Materials*, 2020, 32(30): 2001119
- [25] Fölsch S, Yang J S, Nacci C, et al. Atom-by-atom quantum state control in adatom chains on a semiconductor[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(9): 096104
- [26] Schofield S R, Studer P, Hirjibehedin C F, et al. Quantum engineering at the silicon surface using dangling bonds[J]. *Nature Communications*, 2013, 4: 1649
- [27] Loeptien P, Zhou L, Wiebe J, et al. Screening and atomic-scale engineering of the potential at a topological insulator surface[J]. *Physical Review B*, 2014, 89(8): 085401.
- [28] König M, Wiedmann S, Brune C, et al. Quantum spin Hall insulator state in HgTe quantum wells[J]. *Science*, 2007, 318(5851): 766–770
- [29] Ye L D, Kang M G, Liu J W, et al. Massive Dirac fermions in a ferromagnetic Kagome metal[J]. *Nature*, 2018, 555(7698): 638–642
- [30] Hu Y, Wu X X, Ortiz B R, et al. Rich nature of Van Hove singularities in Kagome superconductor CsV_3Sb_5 [J]. *Nature Communications*, 2022, 13(1): 2220
- [31] Hu Y, Teicher S M L, Ortiz B R, et al. Topological surface states and flat bands in the kagome superconductor CsV_3Sb_5 [J]. *Science Bulletin*, 2022, 67(5): 495–500
- [32] Cépas O, Fong C M, Leung P W, et al. Quantum phase transition induced by Dzyaloshinskii-Moriya interactions in the kagome antiferromagnet[J]. *Physical Review B*, 2008, 78(14): 140405
- [33] Ortiz B R, Teicher S M L, Hu Y, et al. CsV_3Sb_5 : a Z_2 topological Kagome metal with a superconducting ground state[J]. *Physical Review Letters*, 2020, 125(24): 247002
- [34] Zhao J Z, Wu W K, Wang Y L, et al. Electronic correlations in the normal state of the Kagome superconductor KV_3Sb_5 [J]. *Physical Review B*, 2021, 103(24): L241117
- [35] Sun Z Y, Zhou H, Wang C X, et al. Observation of topological flat bands in the Kagome semiconductor Nb_3Cl_8 [J]. *Nano Letters*, 2022, 22(11): 4596–4602
- [36] Yu S L, Li J X. Chiral superconducting phase and chiral spin-density-wave phase in a Hubbard model on the Kagome lattice[J]. *Physical Review B*, 2012, 85(14): 144402
- [37] Mazzola F, Enzner S, Eck P, et al. Observation of termination-dependent topological connectivity in a magnetic Weyl Kagome lattice[J]. *Nano Letters*, 2023, 23(17): 8035–8042
- [38] Xu G, Lian B, Zhang S C. Intrinsic quantum anomalous Hall effect in the Kagome lattice $\text{Cs}_2\text{LiMn}_3\text{F}_{12}$ [J]. *Physical Review Letters*, 2015, 115(18): 186802
- [39] Ghimire N J, Mazin I I. Topology and correlations on the Kagome lattice[J]. *Nature Materials*, 2020, 19(2): 137–138
- [40] Jiang K, Wu T, Yin J X, et al. Kagome superconductors AV_3Sb_5 ($A=\text{K, Rb, Cs}$)[J]. *National Science Review*, 2023, 10(2): nwac199
- [41] Neupert T, Denner M M, Yin J X, et al. Charge order and superconductivity in Kagome materials[J]. *Nature Physics*, 2022, 18(2): 137–143
- [42] Jiang Z C, Ma H Y, Xia W, et al. Observation of electronic nematicity driven by the three-dimensional charge density wave in Kagome lattice KV_3Sb_5 [J]. *Nano Letters*, 2023, 23(12): 5625–5633
- [43] Zhang Q Z, Zhang Y, Wang T T, et al. Temperature-driven rotation symmetry-breaking states in an atomic Kagome metal KV_3Sb_5 [J]. *Nano Letters*, 2024, 24(22): 6560–6567
- [44] Zhao H, Li H, Ortiz B R, et al. Cascade of correlated electron states in the Kagome superconductor CsV_3Sb_5 [J]. *Nature*, 2021, 599(7884): 216–221
- [45] Huang Z H, Han X H, Zhao Z, et al. Formation and manipulation of diatomic rotors at the symmetry-breaking surfaces of a Kagome superconductor[J]. *Nano Letters*, 2024, 24(20): 6023–6030
- [46] Morgenstern K, Lorente N, Rieder K H. Controlled manipulation of single atoms and small molecules using the scanning tunnelling microscope[J]. *Physica Status Solidi (b)*, 2013, 250(9): 1671–1751
- [47] Bartels L, Meyer G, Rieder K H. Basic steps of lateral manipulation of single atoms and diatomic clusters with a scanning tunneling microscope tip[J]. *Physical Review Letters*, 1997, 79(4): 697–700
- [48] Lorente N, Rurali R, Tang H. Single-molecule manipulation and chemistry with the STM[J]. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 2005, 17(13): S1049–S1074