

反射电子显微术原理和应用

李宗全

(中国科学院固体物理研究所)

本文介绍了反射电子显微术的基本原理、方法及应用。反射电子显微术分辨率高,可同时得到有关表面形貌和结构的重要信息,可进行表面结构变化的动态观察,可用来观察表面单原子高度台阶、位错、表面相变及有关现象。

当电子束以很小的角度掠射大块试样表面时,电子束只能进入试样表面下几个原子层,而反射电子束却有很高的强度。反射电子显微术就是利用反射电子成象来观察试样表面的技术。电子显微术出现的早期就有人利用反射电子成象^[1],但反射电子显微术在其后的发展中曾因其它研究表面的技术的发展而几度出现起伏。到了70年代后期,由于实验技术及理论的发展,反射电子显微术再度受到重视,并取得了较大的进展,以优于1nm的分辨率揭示了试样表面结构细节(如单原子高度台阶、缺陷等^[2-4]),从而打破了反射电子显微术多年来的停滞状态。与其它研究表面的技术相比,反射电子显微术具有分辨率高、可同时得到有关表面形貌和结构的重要信息,并可进行表面结构转变的动态观察等优点。它是一种其它技术不可取代的重要研究技术,受到电子显微学和表面科学工作者的高度重视。

一、基本原理和方法

当大块试样表面接近平行于光轴时,电子束以很小的角度掠过试样表面。由于表面结构引起的倒易杆拉得很长,与厄瓦尔球相交后,在物镜的后焦面上形成反射高能电子衍射图。利用物镜光阑(10—60 μm)选择一反射束成象,便在象面上形成试样表面的反射电子象。与透射电子显微术相比,除了试样相对于电子束的取向关系不同外,反射电子显微术与透射电子

显微术中的暗场象相似,见图1^[5]。为了减小球差、色差对成象质量的影响,必须象透射电子显

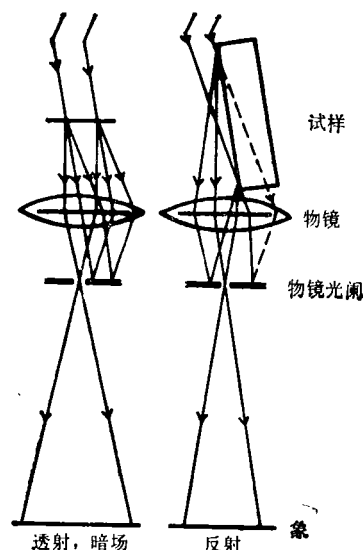


图1 反射电子显微术与透射电子显微术电子光路图的对比

显微术的中心暗场象那样,将成象的反射束调到与电子光轴相平行。

由于电子束与试样表面之间的夹角很小(一般为1—5°),使所得到的反射电子象在平行于电子束方向上产生收缩现象,反射象在平行于电子束方向上的放大倍数为垂直于电子束方向上的放大倍数的1/20—1/40。因此,需要在反射电子显微图的两个方向上标出放大倍数。用高指数反射束成象可以减小收缩现象,但随着散射角的增大,反射束的强度有所降低,

从而影响到反射电子显微象的强度和衬度。这种收缩现象大大减小了在平行于电子束方向上的分辨率,使之比在垂直于电子束方向上的分辨率小20—30倍。

透射电子显微象上各处的聚焦情况基本相同,而反射电子显微象在平行于电子束方向上的聚焦情况处处不同。如果象的中部是正聚焦,则象的上部和下部分别处于过聚焦和欠聚焦状态。这样,在一张照片上就可记录下从欠聚焦到过聚焦的反射电子显微象。

二、电子显微镜

为了观察与表面有关的现象,并获得高质量的反射电子显微象,电子显微镜必须具有超高真空度及原位处理试样的功能。但对于某些表面问题,普通电子显微镜仍不失为有效的研究工具。目前,用于表面反射电子显微研究的电子显微镜有三种:

1. 超高真空电子显微镜

Yagi 等人^[6]建立了在超高真空电子显微镜中进行表面研究的技术。试样台包围在液氮冷却的冷冻头中,试样室的真空度保持在 10^{-8} Pa。尺寸为 $1 \times 10 \times 0.4\text{mm}^3$ 的试样可以在试样室中直接通电加热到 1200°C ,以得到清洁的试样表面或进行表面反应和表面相变的原位观察。另外,样品室还与蒸发器相联,可直接往试样表面蒸发其它元素,然后观察表面吸附、再构等现象。

2. 扫描反射电子显微镜

透射扫描电子显微镜也可用于反射电子显微术^[7]。扫描反射电子显微象的形成类似于暗场透射扫描象。扫描电子显微镜可以将成象、微区电子衍射、电子能量损失分析结合起来,研究晶体表面薄膜和微小粒子的生长过程,研究晶体与气体或沉积的金属粒子之间的表面反应,从而使扫描反射电子显微镜成为研究表面的有力工具。

3. 普通电子显微镜

近代的透射电子显微镜均具有电子束偏转

系统、双倾试样台、试样高度调节等装置。只要改变试样的安装方式,使样品表面平行于电子束入射方向,普通电子显微镜就可以用于反射电子显微术研究^[8]。利用普通电子显微镜进行反射电子显微术时,试样必须具有新解理或刚经过超高真空处理,具有洁净表面。试样尺寸受样品台的限制,最大尺寸不超过3mm,所观察表面的宽度小于0.5mm。

三、反射电子显微象的衬度

由于分辨本领的限制,反射电子显微术不能观察表面的点阵象,只能观察表面缺陷引起的衬度变化。反射电子显微象中有两种衬度:一种是成象的布喇格反射的强度;一种是菲涅耳衍射效应引起的衬度。前面已经提到,反射电子显微象仅在垂直于电子束方向的一条直线上是正聚焦,其它部分都不处于聚焦状态。因此,菲涅耳衍射衬度对反射电子显微象是非常重要的。例如,正聚焦时,表面原子台阶的衬度几乎为零;而稍稍散焦时,台阶的衬度大大增加,可观察到一对明、暗线^[9]。

1. 表面台阶

反射电子显微术可以观察晶体表面单原子高度的台阶。在布喇格衍射条件下,正聚焦时台阶的衬度几乎接近于背底的水平;偏离于正聚焦时,原子台阶呈现亮、暗菲涅耳条纹。图2总结了不同条件下台阶的衬度^[10]。这种衬度是沿台阶方向点阵局部畸变引起的。

如果反射斑与一菊池线相重叠,便会产生一平行或几乎平行于表面的共振束^[11-14]。此时,衍射束的强度显著增加,用此衍射束成象,便可得到较高的亮度和衬度。通常观察反射电子显微象,就是在满足布喇格衍射和共振条件下进行的。此时,即使是在正聚焦区域,向下的台阶仍保持较高的暗衬度,而向上的台阶几乎看不出来,见图3^[12]。如果共振束精确地平行于晶体表面,那么在它自上而下的传播中,当遇到向下的台阶时,便会中止在台阶处,在台阶下方一窄区内无共振束,因而也就没有进入反射

束的次级反射,从而使这一窄区为一暗线。当离焦量大时,由于台阶为较强的明、暗菲涅耳条纹,因而观察不到此暗线。当台阶向上时,台阶不影响共振束的传播,因而在正聚焦区的衬度几乎为零。

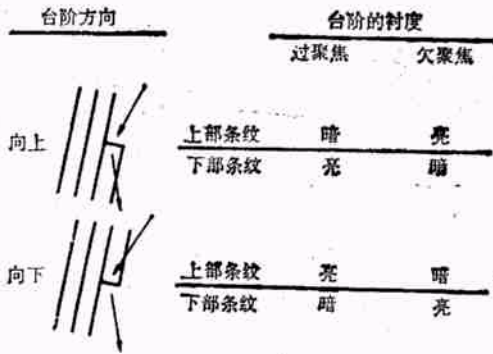


图2 表面原子台阶的衬度与台阶方向和聚焦条件之间的关系

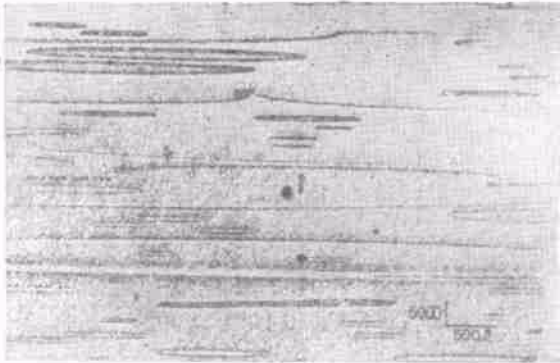


图3 由布喇格及共振(555)反射形成的Pt(111)表面反射电子显微象
(图中虚线标出了正聚焦位置,电子束自上而下,穿过台阶的箭头指出了台阶向下的方向)

2. 位错

Shuman 从理论上研究了位错在晶体表面露头处的衬度^[15]。位错的反射电子显微象是一对明、暗线,线的宽度随位错的特征、所用的布喇格反射、成象电子的能量等因素而定。Osakabe 等人^[16]观察到的 Si(111) 表面上位错露头点的衬度,与理论研究结果相符。位错象的衬度对聚焦情况和布喇格条件等非常敏感。当电子能量较高或用高阶反射成象时,位错象的宽度较大。螺型位错是台阶的终止点,伴有特

物理

征的线状衬度^[16,17]。在精确的布喇格反射条件下,螺型位错呈暗线;当偏离布喇格条件时,是一对位于露头点两侧的明、暗线。刃型位错除不终止在表面台阶处外,也具有与螺型位错相似的线状衬度。刃型位错的衬度与入射方位角有关。

3. 堆垛层错

当堆垛层错与表面相截时,产生条纹花样,其衬度随离交截处的距离增大而很快减弱。当分辨率不太高时,呈一直线。与台阶不同的是,即使层错与表面的截线平行于入射面,堆垛层错仍有衬度,只不过条纹变得很窄而已。Hsu 等人^[18]用反射电子显微术观察了石墨中的堆垛层错。在石墨中,两个不全位错之间形成宽度在 100nm 数量级的堆垛层错。当这种层错距离表面仅几个原子层时,只要不用(0002 η)斑点成象,就可观察到堆垛层错。用不同的衍射斑点成象,堆垛层错成暗带或亮带。

除了堆垛层错外,最外层原子排列顺序的变化也会引起衬度的改变^[19]。

四、应用例子

反射电子显微术可以揭示单晶表面或解理表面的缺陷,如位错、层错、台阶等,因而是研究晶体生长、表面反应等现象的有效方法。

表面相变,特别是硅的表面相变,多年来一直受到人们的关注。文献[17]介绍了硅表面(7×7)-(1×1)结构转变的反射电子显微术动态观察结果。

反射电子显微术可以直接观察粒子的生长行为与衬底材料表面结构之间的关系。Ou 等人^[18]观察了铜粒子在 MgO 表面的分布。他们在经过洁净处理的 MgO 表面上原位蒸发约 0.1nm 厚的铜膜,然后在不同温度下加热。观察表明,铜粒子趋向于沉积在 MgO 大台阶边缘,粒子在 MgO 表面平行外延生长。铜粒子的这种迁移行为与表面台阶的势场有关。当此试样暴露在大气中后,可以观察到小的铜粒子随机装饰 MgO 表面上的小台阶。铜粒子在

MgO 表面分布变化的原因,目前仍不清楚,需要进一步研究。

反射电子显微术已成为研究晶体材料表面的有效方法。近年来,尽管有了较大的进展,但与透射电子显微术相比,无论是衬度理论,还是实验技术,反射电子显微术都尚未成熟,仍有很多问题待解决。除了研制适合于反射电子显微术工作的超高真空电子显微镜外,如何发挥现有透射电子显微镜的效能,使其更加适合反射电子显微术研究的需要,也是目前需要进行的工作之一。

- [1] E. Ruska, *Z. Physik*, 83(1933), 492.
[2] P. E. Hojlund Nielsen et al., *Surf. Sci.*, 54(1976), 340.
[3] J. M. Cowley, *Surf. Sci.*, 114(1982), 587.

- [4] T. Hsu, *Ultramicroscopy*, 11(1983), 167.
[5] T. Hsu et al., in *The Structure and Surfaces*, eds. M. A. Van Hove et al., Springer-Verlag, Berlin, (1985), 55.
[6] K. Yagi et al., in *Crystals, Growth, Properties and Applications*, eds. H. C. Freyhardt et al., Springer-Verlag, Berlin, (1982), 47.
[7] J. M. Cowley, *J. Microscopy*, 129(1983), 253; *Surf. Sci.*, 145(1984), 301.
[8] T. Hsu et al., *Ultramicroscopy*, 11(1983), 239.
[9] N. Osakabe et al., *Surf. Sci.*, 97(1980), 393.
[10] N. Osakabe et al., *Surf. Sci.*, 102(1981), 424.
[11] A. Ichimiya et al., *J. Phys. Soc. Japan*, 49(1980), 684.
[12] T. Hsu et al., *Ultramicroscopy*, 22(1987), 217.
[13] L. -M. Peng et al., *Ultramicroscopy*, 26(1988), 161.
[14] G. Lehmpfuhl et al., *Ultramicroscopy*, 26(1988), 177.
[15] H. Shuman, *Ultramicroscopy*, 2(1977), 361.
[16] K. Yagi, in *Proc. 38th Ann. Meeting Electron Microscopy Soc. Amer.*, ed. G. W. Bailey, Claitor's, Baton Rouge (1980), 90.
[17] 吴自勤, *物理*, 15(1986), 1.
[18] H. -J. Ou et al., *Ultramicroscopy*, 22(1987), 207.

具有巨大克尔磁光效应的一种光盘新材料研制成功

最近我们研究组研制成功一种磁光盘存储新材料——锰铋铝硅膜。它的磁光克尔旋转角惊人地高达 2.04 度。这一数值是目前国外试用的磁光盘存储材料——非晶态稀土和铁族合金膜的五倍,与长期以来从数百种材料中所探明的目前具有最大克尔旋转角的铂锰铋合金相比,也还要大 0.7 度。

克尔磁光效应是,当一束平面偏振光入射到磁性介质表面并反射时,其反射光束的偏振面相对原来入射的偏振面会发生一旋转。这一效应在历史上首先由物理学家克尔所发现并以他的名字命名。

大的克尔旋转角是长期以来科学家所追求的目标。从应用角度讲,它是决定信息可更改的磁光盘性能的一个关键。因为磁光盘不论是用于计算机信息存储还是用于视频和声频场合,旋转角大和信噪比大会带来使用可靠、超清晰的图象和超高保真的音质等优点。从学术上来说,新材料的合成将促使人们进一步认识磁光效应的微观机理,开拓新理论。

早在 60 年代初,科学工作者就提出了利用磁光效应原理制作光盘的设想。然后,科学工作者曾对锰铋合金薄膜进行了广泛的研究。锰铋膜的吸引人之处是其具有较大的磁光克尔旋转角(0.7 度)。但研究结果表明,由于此合金存在高温相变引起的结构不稳定和微米大小的晶粒尺寸带来大的晶界噪声,因而作为光盘存储材料的设想被否定了。进入 70 年代,美国商用计算机公司报道了上述的非晶态合金膜适宜于光盘存储材料,此后研究工作才方兴未艾。目前,磁光盘技

术已日趋成熟,它的存储密度可达每平方英寸亿位至十亿位,是软磁盘的百至千倍,硬磁盘的十至百倍。此外还具有小型、可携带、使用可靠、成本低等特点。据预测,在未来的几年内,磁光盘将形成一大产业。然而,上述非晶材料的克尔旋转角只有 0.3—0.4 度,加上非晶材料在使用过程中性能易变,因此各国科学家纷纷研究新的存储材料。近年来,日本开发的锆代石榴石膜较具有吸引力。它除了结构稳定外,它的克尔旋转角也可达 0.8—0.9 度(使用厚度为 0.3 μm 时),但由于它的生长温度高于 500 $^{\circ}\text{C}$,必须用耐高温的盘基片(如石英),这样会使成本增加,同时也给制作工艺带来很多问题。此外,它的信息写入功率比非晶材料要大三倍。

我们研究组采用扩散掺杂法研制成功的锰铋铝硅膜除了具有上述巨大的磁光克尔旋转角外,并且材料结构稳定,晶粒尺寸均匀,平均为百分之四微米,盘基采用光学玻璃,信息写入功率低,材料价格便宜。所以,它是一种具有潜在应用价值的新磁光盘存储材料。这一研究成果已引起了国内外同行的瞩目。

目前,我们正在进行更深入的研究工作,除了开展探索巨大磁光效应增强的微观机理外,还将进行实用化性能方面的研究,争取对我国光盘这一新兴产业作出贡献。

(中国科学院物理研究所磁光存储
材料和物理研究组)