

正电子显微镜¹⁾

郁 伟 中

(清华大学现代应用物理系, 北京 100084)

用正电子代替电子作为入射束流可组成新的显微镜。正电子从固体表面的重发射受表面和表面层下空位型缺陷的影响, 因此正电子显微镜可用于无损探测和研究表面层下的缺陷。

自从电子显微镜发明以来, 其发展速度是极其迅速的, 已在各个领域发挥了重要的作用。目前人们正在为实现两个目标而努力。一是希望最大限度地提高空间分辨率。当电镜刚问世的时候, 其分辨率并不高, 而现在人们已用高分辨透射电子显微镜拍摄到原子点阵的清晰

子气体], 见图 6。

从能量的色散关系, 根据 $\frac{1}{m^*} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{d^2 E}{dk^2}$, 得到电子(空穴)有效质量和电子有效质的比 $\frac{m^*}{m} \sim 5-10$ 。

到目前为止, 氧化物超导体的超导机制尚未完全搞清。但根据现有的实验结果, 可以想象 Cu 在五个氧原子的配位场作用下原来五度简并的 d 能级分裂。其中能量最高的 $3d_{x^2-y^2}$ 能级配有一个电子。由于库仑相互作用大, 其局部的自旋和相邻原子的电子配对形成反铁磁性。O2p 轨道在费米面附近。由于掺杂空穴使费米面附近的态密度增加, 空穴在 $2p_{x,y}$ 轨道即 Cu-O 平面的几率最大。载流子空穴通过自旋相互作用形成库珀对, 呈现超导电性。高温超导体的电子状态, 似乎处在费米液体和被空穴掺杂的强电子相关的莫特绝缘体这样两种极端的概念之间的中间状态。当然上述说法并未得到普遍的认可, 如费米面和费米液体的存在, 空穴的形成和位置等还有争议, 特别对于电子导电的 n 型超导体 (Nd-Ce-Cu-O), 还有待于进一步研究。对于超导机制也有各种模型。这一切都期待着更精密的实验和更完美的理论解释。

的照片, 已使二千多年前德谟克利特的物质是由原子组成的大胆假设得到最直接的验证。另一个目标是利用各种束流(粒子或波)作为入射束流, 并结合各种不同形式的成象原理(如透

1) 本工作得到国家自然科学基金资助。

作者在写作过程中和赵忠贤、陈立泉、解思深、赖武彦等同志作过有益讨论, 在此表示感谢。

- [1] J. G. Bednorz and K.A. Müller *Z. Phys.* **B64** (1986), 189.
- [2] 赵忠贤、陈立泉等, 科学通报, **32**(1987), 661.
- [3] M. K. Wu et al., *Phys. Rev. Lett.* **58**(1987), 908.
- [4] H. Maeda et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**(1988), L209.
- [5] Z. Z. Sheng et al., *Nature* **322**(1988), 55.
- [6] J. Akimitsu et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **27** (1988), L209.
- [7] 北沢宏一等, 应用物理, **57**(1988), 2644; J. Fink et al., *IBM J. Res. Develop.*, **33**(1989), 372.
- [8] 李思和, 结构化学, 北京师范大学出版社, (1987), 175.
- [9] 藤森淳, 表面科学, **9**(1988), 19.
- [10] D. D. Sarma *Phys. Rev.* **B37**(1988), 7948.
- [11] D. E. Gough et al., *Nature*, **326**(1987), 855.
- [12] L. F. Mattheiss, *Phys. Rev. Lett.*, **58**(1987), 1024.
- [13] A. Fujimori, *Solid State Commun.*, **63**(1987), 657.
- [14] 石井等, 应用物理, **57**(1988), 828.
- [15] D. W. Anderson, *Science*, **235**(1987), 1196.
- [16] N. Nücker et al., *Phys. Rev.* **B37** (1988), 5158; *Phys. Rev.* **39**(1989), 6619.
- [17] T. Takahashi et al., *Nature*, **334**(1988), 691.

射、反射、重发射及隧道等原理),来组成各种不同功能的显微镜,如扫描透射电子显微镜、扫描隧道电子显微镜和场发射电子显微镜等。正电子显微镜(Positron microscope)也已成为电镜家族中最年青的一员。

正电子显微镜的发展只是近二、三年的事。1988年初,美国 Michigan 大学的 J. V. House 和 A. Rich^[1] 发表了有关透射式正电子显微镜的第一篇文章。此后二人又在 1988 年 8 月发表了正电子重发射显微镜的第一篇文章^[2]。几乎同时美国 Brandeis 大学的 G. R. Brandes 和 K. F. Canter^[3,4] 等人也发表了正电子重发射显微镜文章。现在德国、日本也有计划准备研制正电子重发射显微镜。

一、正电子束的产生

在正电子显微镜中,是用正电子束来代替电子显微镜中的电子束,但这正是正电子显微镜的困难之处。电子束是极容易得到的,如真空电子管中钨丝加热就可以得到 mA 量级的电子束。而正电子只能来自放射源的 β^+ 衰变或直线加速器中带电粒子对某些物质的轰击而产生的正电子,前者放射源价格昂贵,后者直线加速器设备复杂。

正电子显微镜的另一困难之处是必须把正电子慢化。因为从放射源中放射出来的正电子的能量很高,约为 0.5MeV 量级,而且能量非常发散,这种正电子无法聚焦,必须进行慢化。慢化过程是这样的:首先让高能正电子射入由钨单晶或其它材料组成的慢化体中,这种材料具有强的正电子负功函数。正电子在慢化体中损失能量而慢化(又称为热化),成为慢化正电子而停留在慢化体中。大部分正电子射入较深的厚度内,小部分正电子停留在近表面,离表面近的正电子有可能扩散回到表面。由于慢化体对正电子有负功函数,表面正电子会自动向真空中发射,发射出来的正电子能量为 1—3eV,发射效率(出射正电子和入射正电子数之比)约为 10^{-3} — 10^{-4} 。所以,大部分正电子在慢化过程中

损失掉了。

二、透射式正电子显微镜

如前所述,正电子显微镜已研制了透射式正电子显微镜和重发射式正电子显微镜两种。

透射式正电子显微镜(transmission Positron microscope)简称为 TPM,它的基本思想和透射式电子显微镜(TEM)的原理类似,只是用正电子束代替电子束。正电子束从样品的一侧入射,透过样品在另一侧成象。只是正电子和样品的相互作用与电子和样品的相互作用不一样,从中可以得到一些有用的信息。和透射电子显微镜一样,其样品必需足够薄。

美国 Michigan 大学的透射式正电子显微镜的原理见图 1^[1]。他们的正电子来自 40 mCi

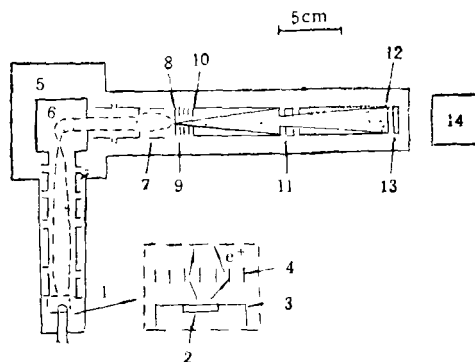


图 1 透射式正电子显微镜原理图

- 1.慢正电子源; 2.²²Na 源; 3. Ti 窗; 4. 钨百页窗式慢化体; 5. 拐弯磁场; 6. 正电子束; 7. 聚透镜; 8. 靶; 9. 物镜; 10. 对比度孔; 11. 投影镜; 12. CEMA(通道式电子倍增阵列); 13. 荧光屏; 14. 录象机及图象处理系统

的 ²²Na 放射源。从放射源中放射出来的正电子经过慢化、加速聚焦和能量选择,选出能量为 keV 量级的正电子束打入样品中,正电子束流强度为 3.5×10^5 正电子/s。和透射电子显微镜一样,正电子穿过样品在背后成象,但它是在由 CEMA(通道式电子倍增阵列)和荧光屏组成的系统上成象,并通过电视摄象系统观察,因为荧光屏上会有随着电子-正电子湮没而放出的 γ 光子。成象系统中通过 384×384 存储器

阵列,把每一个光点按数字信息记录下来。若用厚度为20—40nm的聚合物作为样品,上面再覆盖一个铜网,正电子束流中20—50%的正电子可以穿透过聚合物,而铜网网丝处正电子不能透过(正电子最大穿透厚度为80nm)。其成象图为一个白色衬底上有黑色条纹的图象,黑色条纹为铜丝。这种透射式正电子显微镜的空间分辨率尚很低,约为 $1.6\mu\text{m}$,靶上正电子斑点为 1.7mm ,放大倍数约为55—125倍,得到一个图需四个多小时。

三、重发射式正电子显微镜

重发射式正电子显微镜(positron reemission microscope)简称为PRM。它与透射式正电子显微镜的原理不同,但与热离子透射式电子显微镜的原理有相似之处。正电子在某些材料中具有负的功函数,象热离子可以从材料表面发射一样,正电子也可以从某些材料表面发射。L. D. Hulet, J. M. Dale 和 S. Pendyala 在1984年就提出了这一设想^[5]。根据入射和重发射位置的不同,重发射式正电子显微镜又分为透射式重发射和背发射式重发射两种。

图2是Michigan大学的背发射式正电子重发射显微镜的原理图^[2,6]。在厚样品的情况下,可用背发射式正电子显微镜。当一束能量为1—10keV的正电子束射入样品中后,大部分正电子停留在样品表面,约有50%的正电子可以从样品的同一侧重发射到真空中。这种返回到真空中的正电子能量很低,约为1eV,把它们收集起来可再加速成象。如果正电子在各处的重发射几率是一样的,那将无象可成。但正电子容易被空位型缺陷(如空位、位错及空位团等)捕获,所以有缺陷处重发射几率要小。表面的污染,表面正电子素的形成和材料的晶向等也会影响重发射几率。该显微镜用40mCi的 ^{22}Na 正电子源,用钨慢化器,入射正电子束流 5×10^7 正电子/s,样品上束流斑点直径为2.5mm,入射到样品时正电子能量为2keV,有一个对比度孔以提高分辨率,投影镜把象投影在

CEMA上,每一个入射正电子在荧光屏上可产生一个直径为 $100\mu\text{m}$ 的斑点,放大倍数为15—55倍。他们认为放大倍数还可以有极大的提高。

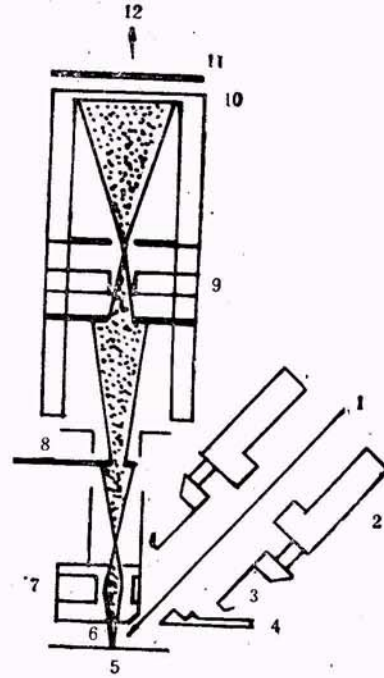


图2 背发射式正电子重发射显微镜

- 1.入射正电子束; 2.入射透镜; 3.聚透镜; 4.阳极;
5.靶; 6.阳极孔; 7.物镜; 8.对比度孔; 9.投影镜;
10. CEMA; 11. 荧光屏; 12. 接录象机

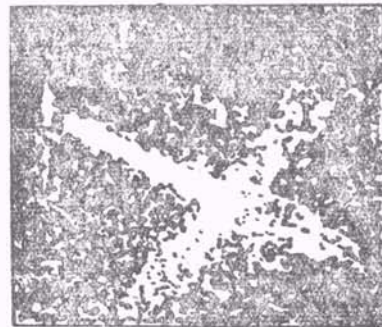


图3 铅膜经辐照后的背发射式正电子重发射显微图(辐照时上盖铜网,网丝下的铅缺陷少,重发射的正电子多,图中显白色;网眼中相反显黑色)

他们把一铅膜先进行 1400°C 真空退火4h,以消除样品中的缺陷,表面覆盖一层铜网后

再进行氮离子辐照，去掉铜网后的背发射正电子图象如图3所示。铜网未覆盖的地方缺陷多，重发射几率小，图上呈暗区，覆盖的部分缺陷少图象呈亮区，分辨率为 $2.3\mu\text{m}$ ，放大倍数56倍。

若使用对比度限流孔减少弹性散射的本底后，则可使空间分辨率提高到 $0.15\mu\text{m}$ ，放大倍数也可提高。若分辨率再提高，则可用于研究表面微裂纹、成核过程或缺陷生长等。

美国 Brandeis 大学的 G. R. Brandes 和 K. F. Canter 等人在 1988 年发表了他们的有关透射式正电子重发射显微镜的文章^[3,7]。在薄膜样品的情况下 ($100-200\text{nm}$)，可用透射式正电子重发射显微镜，正电子从样品的一侧入射，正电子在样品中扩散到另一侧并在另一侧向真空中重发射，然后放大成象。和透射式正电子显微镜 TPM 相比，透射式重发射正电子显微镜的样品要厚一些，正电子的出射是依靠正电子的重发射而不是 TPM 中的透射。图4是该装置的主要部分。垂直于正电子束的光路上放置了一薄膜样品，他们使用了 150nm 厚的镍箔并在上面覆盖 $10\mu\text{m}$ 厚的具有四方形网眼的镍网作为掩盖物。因此，除了上面所提到的影响重发射几率的因素之外，样品厚度是另一个主要因素。显然，厚的地方发射正电子少或无法发射正电子。图5是他们得到的镍膜和镍网的图象。网丝处发射的正电子少呈暗条，网眼处发射的正电子多呈亮块。仪器的分辨率

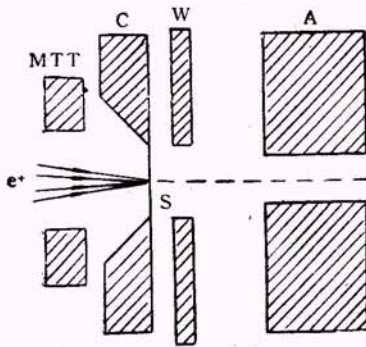


图4 透射式正电子重发射显微镜的主要部分
(S. 样品; MTT. 微形双管镜; C. 阴极;
W. 文纳尔极; A. 阳极)

为 $1\mu\text{m}$ ，放大倍数为 330 倍，后来分辨率又提高到 $0.3\mu\text{m}$ ，放大倍数为 1150 倍^[4]。他们希望把分辨率提高到几十个 \AA 以至几个 \AA 。仪器的其它条件为：使用了 80mCi 的 ^{58}Co 源，初次慢化的正电子束流为 1.8×10^5 正电子/s，二次慢化的正电子束流为 10^4 正电子/s。二次正电子束加速成 5keV ，样品背面入射的正电子束斑直径为 $20\mu\text{m}$ ，从样品另一面发射正电子。

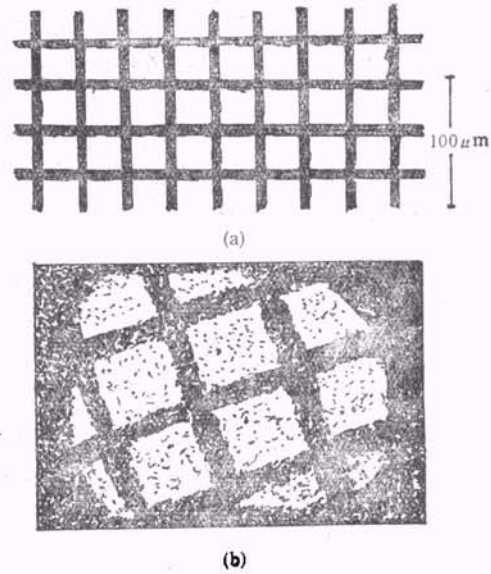


图5 透射式正电子重发射显微镜的照片
(a) 一块附着在镍网格上的多晶镍膜样品的光学照片
(镍膜厚 150nm ，镍网厚 $10\mu\text{m}$)；
(b) 正电子显微镜照片 (镍网丝宽 $8\mu\text{m}$ ，网眼宽 $26\mu\text{m}$ ，放大倍数为 33 倍)

已开发的正电子显微镜有透射式正电子显微镜和重发射式正电子显微镜两种。前者直接模拟透射式电子显微镜；后者是利用正电子的重发射性质，所以更具有正电子的特色。

虽然透射式正电子显微镜和正电子重发射显微镜都属于正电子成象设备，但二者是不一样的。透射式显微镜使用薄膜样品，研究样品的体内性质；而重发射式显微镜虽然可以研究厚样品（透射式正电子重发射显微镜实际上也是厚样品），但研究的是样品的表面性质。二者都可以通过改变正电子束的能量来研究缺陷的深度分布。

光电子学与光电子产业专题系列介绍

用于 X 射线光学的多层膜

曹 健 林

(中国科学院长春光学精密机械研究所,应用光学国家重点实验室,长春 130022)

用于 X 射线,特别是软 X 射线(波长范围约为 30—1nm)光学中的多层膜近十年来引起了人们的广泛重视,取得了许多重要进展。本文对这类多层膜的特点、制备和检测方法以及应用等作简要介绍。

每层膜厚为 nm 量级的多层膜制备与应用研究近十年来取得了一系列进展。本文只简要介绍用于 X 射线光学及其相关领域中的多层膜。

早在本世纪 20 年代人们就发现,基于全反射机制的掠入射反射镜是 X 射线波段中能够应用的唯一光学元件。这一限制起源于该波段所有物质的折射率都很接近并小于 1 (除了在某些物质的吸收边处折射率略大于 1 以外),没有合适的透镜材料,同时非掠入射反射率也极低(10^{-4} — 10^{-12} 量级)。掠入射光学系统集成光本领差,象差严重,同时还需要大尺寸光学元件,给加工带来很大困难。为了从根本上克服这些困难,IBM 公司的 Spiller 于 1972 年首先提出^[1],可以象可见光波段那样在 X 射线波段应用多层膜技术,在经过超光滑加工的平面或曲面基板上用轻元素和重元素交替镀上光学厚度

为 $1/4$ 波长的薄膜,由此制作的多层膜反射镜有可能大幅度地提高反射率,发展成 X 射线波段非掠入射光学元件。要实现这一设想当然并非易事。根据简单的标量散射理论,表面反射率随 $(\sigma/\lambda)^2$ 的增加呈指数形式下降,其中 σ 为表面粗糙度的均方根值, λ 为入射光波长。以 $\lambda = 10\text{nm}$ 的软 X 射线为例,“光滑表面”意味着 σ 要小于 1nm ($\lambda/10$),而 $\lambda/4$ 意味着每层膜厚在 2.5nm 左右。考虑到原子线度为零点几个 nm 量级,制备这样的薄膜元件要求基板加工、粗糙度检测以及膜厚控制的精度都要提高到原子尺度。

到 80 年代初,Spiller 以及美国洛伦兹-利弗莫尔实验室的 Barbee 等人制备的多层膜反射镜在 10nm 以上波段正入射实测反射率已大于 10%,初步达到实用要求。80 年代末, 40nm 以上波段正入射实测反射率大于 10% 的

经过二、三年的努力,正电子显微镜已达到普通光学显微镜的分辨率和放大倍数,放大倍数为 1000 倍左右,分辨率达亚微米量级。有人相信以后能达埃的量级。

由于正电子的独特性质,人们希望用正电子显微镜研究空位、位错等缺陷或生物样品,希望看到表面下的“单空位”。但现在由于慢正电子产额低和要使用强放射性源,在经济上和技术上都有一些困难,也许不久会成为一种有用的技术。

- [1] J. V. House and A. Rich, *Phys. Rev. Lett.*, **60**(1988), 169
- [2] J. V. House and A. Rich, *Phys. Rev. Lett.*, **61**(1988), 488.
- [3] G. R. Brandes, K. F. Canter et al, *Appl. Phys.*, **A46**(1988), 335.
- [4] G. R. Brandes, K. F. Canter et al, *Phys. Rev. Lett.*, **61**(1988), 492.
- [5] L. D. Hulett et al., *Mater. Sci. Forum*, **2**(1984), 133.
- [6] A. Rich and J. V. House, *J. Electron Microsc. Tech.*, **9**(1988), 209.
- [7] G. R. Brandes et al, *Positron Annihilation*, Edited by L. Dorikens-Vanpraet et al., World Scientific Publ., Singapore, (1988), 600.