

电离能量损失,独立进行 48 次取样测量.室内充气 4 个大气压,给出很好的能量分辨.整个室工作在 4.5 千高斯的轴向磁场中,利用粒子径迹在磁场中的偏转方向和曲率半径,可给出粒子的电荷极性以及粒子的“表观动量” p/Q (其中 p 是粒子的实际动量, Q 是粒子的电荷).在处理实验数据时,为了减少朗道起伏效应,取其中 60% 的低幅度脉冲求出平均值,这样可以得到每个粒子的平均能量损失.根据平均能量损失和“表观动量”,就可以完全确定粒子的电荷和质量,分辨出不同质量和电荷的自由夸克.

这个实验的结果,到目前为止也没有找到自由夸克.分析实验数据,给出了由高能正负电子对撞反应产生自由夸克的上限.在正负电子质心系总能量为 27 到 35 京电子伏的范围内.对于电荷为 $2/3$ 电子电荷、质量小于 12 京电子伏(约为质子的 12 倍)的自由夸克,其产生截面与正负 μ 子对的产生截面的比值,上限小于 10^{-2} .

上面介绍的几个实验,只是最近做的高能实验中的几个例子.从这些例子中,我们也可以看到,人们是怎样付出努力,在高能加速器上不断地搜索自由夸克.为什么在高能加速器上

找不到自由夸克呢? 人们对此有种种解释.比如有人说,夸克只能绝对禁闭在强子内部,它要跑出强子,需要克服一个无穷大的势垒^[7];还有人说,自由夸克的质量比预想的要大得多,现在的高能加速器提供的能量还不能产生自由夸克,实验物理学家也寄希望于在更高能量的新加速器上继续寻找自由夸克;还有人认为,过去所做的实验中,假定的产生自由夸克机制和探测夸克的方法都是错的,所以没有能够探测到^[8]等等.虽然现在的高能加速器实验还没有找到自由夸克,但自由夸克的问题强烈地吸引着实验物理学家们作进一步的探索.

参 考 文 献

- [1] M. Gell-Mann, *Phys. Lett.*, **8**(1964), 214.
- [2] 参见《高能物理》1980 年第三、四期关于夸克学说的介绍.
- [3] L. W. Jones, *Rev. Mod. Phys.*, **49**(1977), 717.
- [4] C. W. Fabjan et al., *Nucl. Phys. B*, **101**(1975), 349.
- [5] M. Basile et al., *Nuovo Cimento*, **45A**(1978), 281. and CERN-EP/80-169, 9. September, 1980.
- [6] JADE-Collaboration, DESY, 80/71.
- [7] T. de Grand et al., *Phys. Rev. D*, **12**(1975), 2060.
- [8] A. de Rujula et al., *Phys. Rev. D*, **17**(1978), 285.

透射扫描电子显微术的一些进展*

阿·豪维

自从 1968 年 Crewe 教授及其同事们进行了场发射透射扫描电子显微镜的开创性工作^[1]以来,透射扫描电子显微术有了很大的进展.透射扫描电子显微镜 (STEM) 把扫描电子显微镜 (SEM) 和普通透射电子显微镜 (CTEM) 的优点结合起来,成为材料科学和生物学的强有力的研究工具.

Crewe 和 Wall^[2]指出,透射扫描电子显微镜的各种衬度图象与普通透射电子显微镜的相应衬度图象十分相似,这种相似性可以用倒易原理来说明^[3].倒易原理指出,当光源 S 在 r_1

位置时,位于 r_2 位置的探测器所探测到的信号振幅为 $\phi(r_1, r_2)$;将光源和探测器互易位置后,在 r_1 位置上的探测器所探测到的信号振幅为 $\phi(r_2, r_1)$,与 $\phi(r_1, r_2)$ 相等.当光源和探测器之间存在散射介质时,严格说来,上述倒易原理仅对弹性散射波成立;对能量损失小的非弹性散射波,信号的强度仍存在倒易关系,即

* 本文是英国皇家学会会员、剑桥大学卡文迪许实验室阿·豪维 (A. Howie) 博士于 1980 年 9 月来华讲学的部分内容,由北京大学物理系冯孙齐整理,未经原作者审阅.

$|\phi(r_1, r_2)|^2 = |\phi(r_2, r_1)|^2$; 倒易原理不能应用于能量损失大的非弹性散射波。普通透射电子显微镜中的入射电子在样品中传播的理论, 可通过傅氏变换应用于透射扫描电子显微镜中^[4]。

图1是场发射透射扫描电子显微镜的示意图。场发射枪的亮度可达 $10^9 \text{ A/cm}^2 \cdot \Omega$, 比普通钨丝枪高4—5个数量级。在保证一定的衬度条件下, 焦斑可达 $2-3 \text{ \AA}$, 从而可获得很高的分辨率。为了保证透射扫描电子显微镜的高分辨率, 必须十分注意镜体的机械稳定性和枪室的磁屏蔽, 场发射枪要求超高真空 $\sim 10^{-10} \text{ mmHg}$ 。为了更换样品方便, 将镜体分成两部份(见图1), 下部为枪室, 上部为样品室, 样品室真空度约 10^{-8} mmHg 。

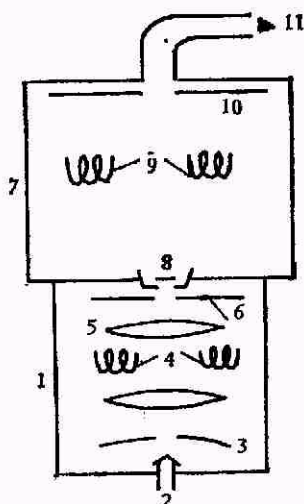


图1 场发射透射扫描电子显微镜示意图

1. 枪室; 2. 场发射枪 (80keV); 3. 加速电极; 4. 扫描线圈; 5. 物镜; 6. X射线及背散射电子探测器; 7. 样品室; 8. 样品; 9. Grigson 线圈; 10. 环形探测器; 11. 磁能量分析器。

探测系统包括环形探测器、磁能量分析器和X射线及背散射电子探测器。在环形探测器后面可安装接受屏, 把环形探测器接受的电信号转换成光信号, 从而可进行直接观察。

扫描线圈可使电子束在样品上扫描, 或将电子束固定投射到样品上的某一点。Grigson 线圈可使被样品散射到不同方向的电子发生偏转, 使之进入磁能量分析器进行能量分析。为

了减少畸变 Grigson 线圈应具有良好的线性度。

透射扫描电子显微镜的主要优点是, 它可以提供样品的多方面的信息: 微区衍射、电子能量损失谱¹⁾、X射线谱、电子束感生电流 (EBIC) 和阴极荧光 (CL) 等。因此, 透射扫描

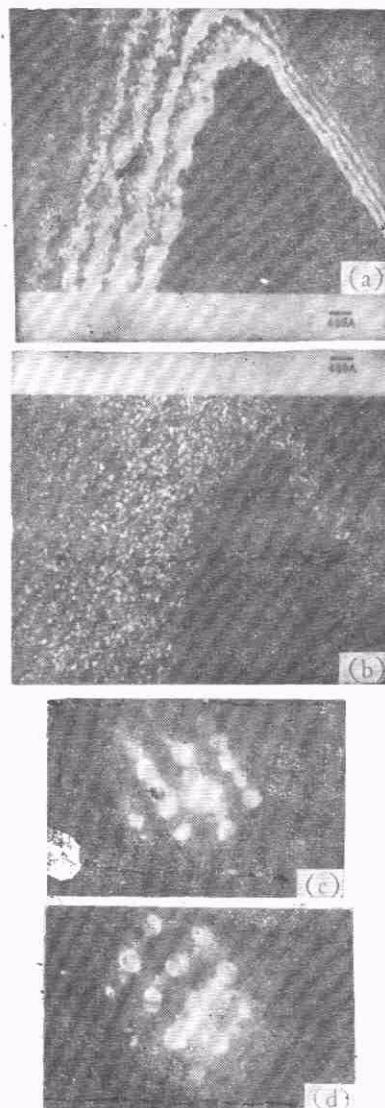


图2 Cu-Pt 合金的透射扫描电子显微镜的暗场象及微区电子衍射花样

(a) 主要点阵衍射的暗场象; (b) 超点阵衍射的暗场象; (c) 亮点区域的衍射花样; (d) 亮点之间的区域的衍射花样

1) 入射电子在样品中将受到各种非弹性散射, 能量将有不同程度的损失。记录各种经能量损失后的电子, 可得电子能量损失谱。

电子显微镜成为研究材料微区性质，特别是研究单个原子的有力工具。

利用透射扫描电子显微镜，可以研究材料的微区形貌和结构。例如，研究合金中的短程有序区及碳膜中的局部石墨化等问题。图2为Cu-Pt合金(有序合金)的透射扫描电子显微镜照片，其中(a)为由主要点阵反射得到的暗场象，(b)为由超点阵反射得到的暗场象。当将电子束射到图2(b)中的亮点区域上，得到的衍射花样如图2(c)所示，其中有明显的超点阵衍射斑点，表明图2(b)中的亮点为小的有序区；当电子束射到两个亮点之间的区域时，所得的衍射花样中，原有的超点阵衍射斑点消失了，如图2(d)所示，说明亮点之间的区域为无序区。假定有序区为球形，比较超点阵衍射斑点的强度和主要衍射斑点的强度，可估算出有序度。

图3为电子能量损失谱的示意图。电子能量损失谱的能量范围约0—2 keV。当样品很薄时，一部份入射电子与样品作用后，能量损失很小，如图3前半部所示；图3中的后半部只在样品较厚时才出现。

等离子振荡是固体内的价电子，在入射电子激发下引起的集体运动，等离子振荡引起的峰高与样品厚度有关，如样品厚度为1000 Å时，峰高接近零能量损失电子的强度；如样品厚度为~100 Å时，峰高仅为零能量损失电子的强度的1/10。等离子振荡的平均自由程 Λ 与入射电子能量 E 有关，当 $E \simeq 100\text{eV}$ 时， Λ 最小，约为原子间距；当 $E < 100\text{eV}$ 时，由于不易激发等离子振荡，故 Λ 反而增大；当 $E > 100\text{eV}$

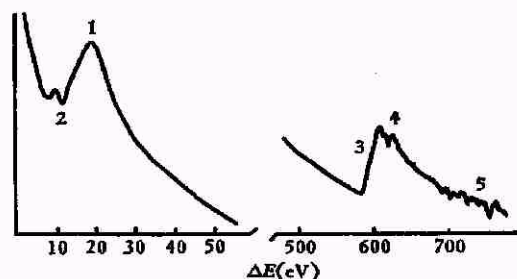


图3 电子能量损失谱示意图

1. 等离子振荡； 2. 表面等离子振荡； 3. 吸收边；
4. 精细结构； 5. 广延精细结构 (EXELFS)

时， Λ 随 E 增加而增大，当 $E = 100\text{eV}$ 时， Λ 约为1000 Å。表面等离子振荡问题目前正在深入研究中，最近有人对100 Å左右的小粒子的表面等离子振荡问题做了研究。金刚石和石墨是碳的同素异构体，层状结构的石墨中有 π 价电子和 sp^2 价电子，因此在石墨的能量损失谱中有两个峰，分别由 π 价电子和 sp^2 价电子形成；金刚石中只有 sp^3 价电子，因此在金刚石的能量损失谱中只有一个峰。根据能量损失谱的研究，可以很容易确定蒸发碳膜中，究竟含有多少石墨和金刚石。

能量损失谱中的吸收边，对应原子内层电子的激发，由吸收边的位置可以判断原子的性质。例如，碳原子K层吸收边为290eV，氧原子的K层吸收边为510eV等等。对原子序数大的原子，还可能有L, M层吸收边。吸收边附近的精细结构(见图3)，反映能带的精细结构。在吸收边附近，从原子内层激发出来的电子能量较低，约几十个eV，它们与价电子相互作用弱，不易激发等离子振荡，故其平均自由程较大，因此必须考虑与整个价带中的电子的相互作用。所以，精细结构具有取向效应，有人曾在六角晶体中观察到这种现象。

图4为非晶硅的透射扫描电子显微镜照片^[5]，其中可以看到约50 Å的原子群。这种非晶硅是硅烷(SiH_4)通过射频辉光放电而沉积在碳或NaCl支持膜上得到的。微区衍射定性地发现有晶态硅存在，由于衍射花样模糊，确切的晶态性质尚不清楚，同时还发现在碳膜和NaCl膜上分别有铜和氧化亚铜(Cu_2O)小颗粒。当电子束对准铜颗粒时，所得电子能量损失谱如图5(a)所示，其中除有 $\text{SiL}_{II,III}$ 吸收边

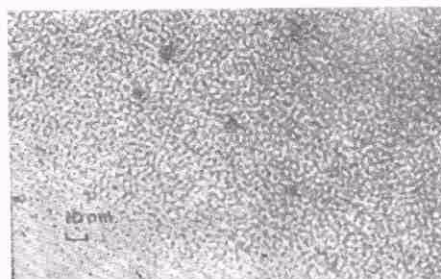


图4 非晶硅的透射扫描电子显微镜照片^[5]

(~ 90 eV) 外,在 ~ 74 eV 处还发现有 $\text{Cu M}_{\text{II,III}}$ 吸收边。当电子束偏离铜颗粒时,铜的吸收边不出现,如图 5(b) 所示。非晶硅中的铜是在制样过程中,由于支持样品的铜网受到溅射而引入的。氧是由衬底上吸附的水或氧气引入的,由于碳与氧的亲合力大,故在碳衬底上的非晶硅中的铜颗粒未被氧化,相反,在 NaCl 衬底的情况下,铜颗粒被氧化成 Cu_2O 。

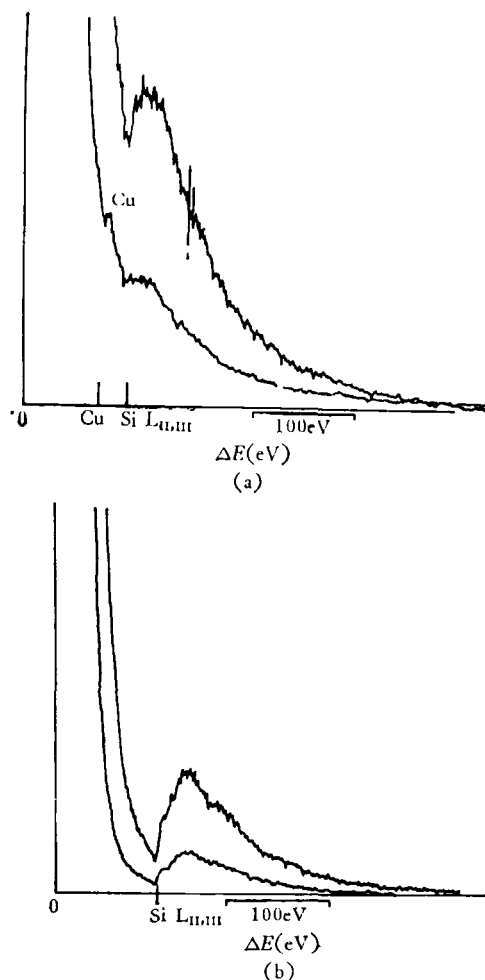


图5 非晶硅的电子能量损失谱^[5]

(a) 电子束对准铜颗粒; (b) 电子束偏离铜颗粒

电子能量损失谱的广延精细结构 (EXELFS) 对分析非晶态特别有用。此时,由于离吸收边较远,被激发出来的电子的能量较高,约 $100 \sim 200$ eV, 所以它们的散射自由程及它们与周围价电子相互作用而引起的等离子振荡的平均自由程都很短,约为原子间距,因此只需考虑

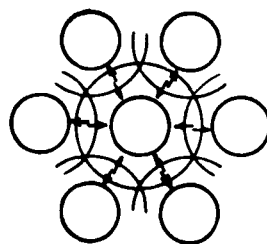


图6 EXELFS 形成的示意图

与最近邻原子的价电子的相互作用,如图 6 所示。假定由中间的原子打出 K 电子,它与周围原子相互作用,受到反射而带有位相信息。这种相互作用类似于空腔内的共振,从而造成能量损失谱上的起伏(广延精细结构)。用傅氏分析方法对广延精细结构进行分析,可以得到原子径向分布函数,取得近邻原子性质的信息。

EXELFS 和同步辐射加速器中的 EXAFS (广延 X 射线吸收精细结构) 十分相似。EXAFS 中 X 射线的吸收截面比 EXELFS 中内层电子激发截面大 4—5 个数量级,但电子束流比 X 射线的束流大 4—5 个数量级,两者正好抵消,因此 EXAFS 和 EXELFS 有相同的信号强度。EXAFS 技术需要庞大的实验设备,而 EXELFS 技术所需设备相对来说简单得多,花钱也少得多,而所得的信息与 EXAFS 是类似的。EXELFS 适于研究微区的不均匀性,或微区中的原子分布; EXAFS 适于研究大块样品,例如大块样品中粒子的分布等问题。在西方,由于已将大量资金投到建造同步加速器上,因此在 EXAFS 方面开展了较多的工作。对中国的同行来说,还来得及根据两种技术的优缺点的比较和本国的条件,确定究竟侧重采用哪一种技术更好一些。

当速度为 v 的电子从原子 A 附近通过时,如碰撞参量(电子入射路径与原子间的距离)为 b ,则原子库仑场对电子的脉冲作用时间 τ 为 $\tau = b/v$,如图 7(a) 所示。由脉冲场的傅氏分析可求出入射电子的能量的变化 ΔE 与 τ 成反比,即 $\Delta E \approx \hbar/\tau = (\hbar v)/b$ 。如果 $b \leq d$ (晶面间距),则将发生通道效应,令 $b = d$,则发生通道效应时的入射电子速度为 $v = d\Delta E/\hbar$ 。若

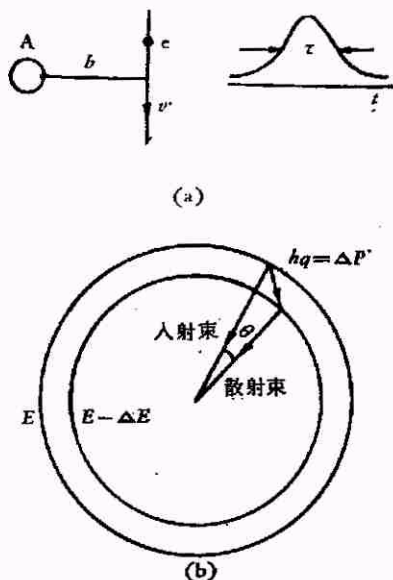


图7 (a) 电子碰撞参量和脉冲作用时间的示意图;
(b) 入射束和散射束之间的动量转移

$\Delta E = 100\text{eV}$, 则通道效应变得显著时的入射电子能量约为 2keV (由上式的 v 算出)。

上述问题也可在倒易空间中讨论。假定入射束与散射束间的夹角为 θ , 如图 7(b) 所示, hq 为动量转移量。在 $\theta = 0$ 时动量转移量最小, 为 $hq_{\min}$ 。利用相对论公式 $E^2 = p^2 c^2 + m_0^2 c^4$, 可求得 $hq_{\min} = \Delta E / \hbar v$, 因此, 在倒易空间中, 通道效应发生的判据为 $g \leq q_{\min} = \Delta E / \hbar v$, 或 $d \geq [(m_0 c^2) / \Delta E] \lambda (m / m_0) (v / c)^2$, 其中 g 为倒易阵点间距 ($g = 1/d$), m_0 为电子静止质量, m 为电子的相对论质量, c 为光速。因为 $m_0 c^2 \sim 5 \times 10^5 \text{eV}$, $m / m_0 \sim 6/5$, $(v/c)^2 \sim 1/3$, $d \sim 1 \text{\AA}$, 所以当取 $\lambda \sim 0.04 \text{\AA}$ (加速电压约为 100keV) 时, $\Delta E \simeq 8 \times 10^3 \text{eV}$, 即当 100keV 入射电子的能量损失为 8keV 时, 将出现明显的通道效应。电子能量损失谱的能量范围为 $0-2\text{keV}$, 故在吸收边附近不会出现通道效应, 电子能量损失谱没有明显的取向效应, 这是它的优点。而入射电子激发 X 射线谱时, 能量损失可达 10keV , 故取向效应显著, 在做这方面工作时, 必须十分注意这个问题。

透射扫描电子显微镜的另一个重要应用领域, 是利用原子序数 (Z) 衬度^[5]来观察在碳膜或 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 膜上的单个重原子, Crewe 在这方

面进行了开创性的工作。我们知道, 卢瑟福弹性散射截面与 Z 的平方成正比, 而非弹性散射截面近似与 Z 成正比, 故重原子对入射电子的弹性散射比轻原子的散射强得多, 利用环形探测器 (其张角可达 0.5 mrad 到 50 mrad) 可探测到重原子的信息, 形成单个重原子原子序数衬度象。如果同时记录重原子的弹性散射和非弹性散射信号, 并将它们相除或相减, 可得到重原子的比率 (ratio) 象或差别 (difference) 象, 此时由于扣除了背景和入射电子束的某些变化, 使所得的象的衬度成百倍地得到改善。

图 8 为在碳膜上的水银 (Hg) 原子的 Z 衬度象。由图 8(c) 和 (d) 可以看出, 由于扣除了背景的影响, 象的衬度显著改善, 图中亮点为水银原子。用同样的方法观察了在 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 支持膜上的白金 (催化剂) 原子集团的原子序数衬度象, 由于部分 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 为晶态的, 因此在白金原子团的比率象和差别象中, 存在晶态 Al_2O_3 的 Bragg 衍射造成的大块白斑, 影响了象的质量, 所以使用 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 做衬底, 不如使用碳膜好。

电子束感生电流 (EBIC) 和阴极荧光 (CL) 技术已广泛应用于扫描电子显微镜。在透射扫

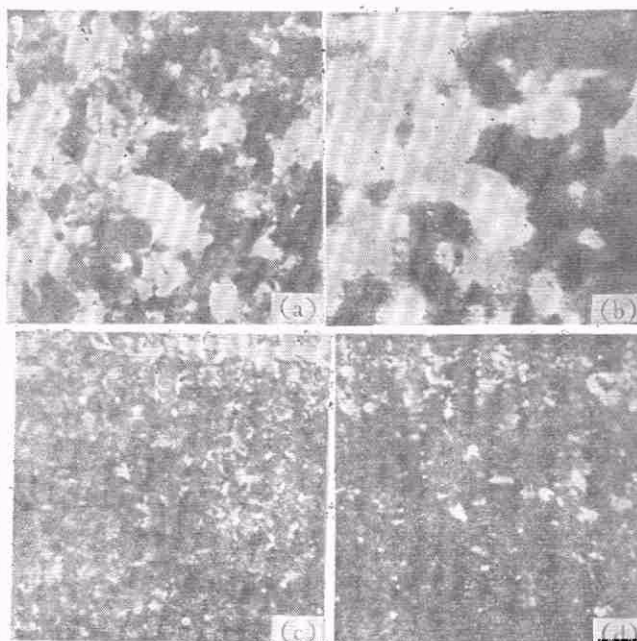


图8 水银原子的原子序数衬度象

(a) 弹性散射电子形成的象; (b) 非弹性散射电子形成的象; (c) 比率象; (d) 差别象

描电子显微镜中,电子束感生电流和阴极荧光技术对研究半导体中的缺陷的电子结构特别有效。我们知道,入射电子可通过单电子激发或等离子振荡激发,最终在半导体中形成许多电子-空穴对。在半导体中,电子-空穴对形成后,即通过复合而消失。但在p-n结附近,由于结区的内建电场的作用,电子-空穴对形成后不再复合,故当用导线将p极和n极连结起来时,形成电子束感生电流。半导体中的缺陷(如位错等)是电子-空穴对的复合中心,当p-n结附近有位错时,在电子束感生电流象中,位错将有衬度,呈现为一条黑线。电子束感生电流象的分辨率取决于电子-空穴对复合时扩散的距离(约 $1\mu\text{m}$),故其分辨率较低,约 $1\mu\text{m}$ 。由于p-n结的薄膜样品一般较厚,拍取衬度象时,一般需用500kV以上的超高压。但对电子束感生电流象来说,由于快速电子反应截面小,信号弱,影响了象的分辨率,为了得到较好的电子束感生电流象,应当减小电压,例如用100kV,甚至最好用几十kV的电压。为此,最好设计带两个枪的透射扫描电子显微镜,一个枪为高压的,用于拍取透射衬度象;另一个枪是低压的,用于拍取电子束感生电流象。

图9(a)为硅二极管中p-n结附近区域的透射扫描电子显微镜照片,其上重叠有EBIC信号^[6],EBIC信号峰标志出耗尽层所在位置。在n区有高密度的错配位错网,位错终止于p区和n区的界面(冶金结)上,它们离开电学结(EBIC峰处)约 $1-1.5\mu\text{m}$ 。在p区几乎没有位错。在室温下,将680keV电子束打到图9(b)虚线所示的区域中,经此辐照后,在n区发现有许多直径约 $100-150\text{\AA}$ 的间隙型位错环,而在p区和耗尽层中没有位错环。当在 100°C 以上高温(例如 450°C)下辐照后,则p区发现有许多间隙型位错环,而在n区较少,如图9(d)所示。在耗尽层中,辐照产生的间隙原子是带电的,带电性质与辐照温度有关。在室温下,辐照产生的间隙原子将被p-n结的电场赶到n区,失去电荷后通过聚集、崩塌形成间隙型位错环;在耗尽层中,带同性电荷的间隙原子互相排斥,故不形

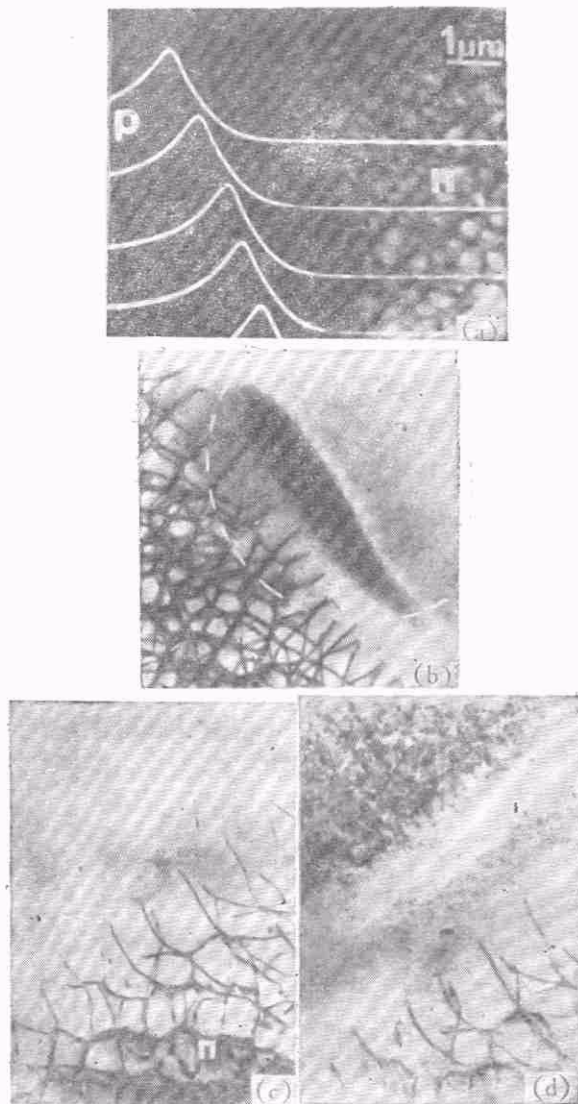


图9 硅中辐照所产生的位错环^[6]

(a) 硅的p-n结的透射衬度象,象上重叠有电子束感生电流(EBIC)信号; (b) 室温下用680keV电子束辐照,虚线表示被辐照的区域; (c) 辐照前的p-n结象; (d) 450°C 下用680keV电子束辐照15分钟,与(c)为同一区域

成位错环。在 100°C 以上辐照时,产生的间隙原子被赶向p区,故在p区看到许多间隙型位错环。由此可推论,应该存在一个中间温度区域,在此温区辐照时,耗尽层中产生的间隙原子为中性的,从而应在耗尽层中看到间隙型位错环。这有待实验证明。电子束感生电流信号对辐照损伤十分敏感,可用它来测定辐照损伤的阈值。

我们知道,位错在阴极荧光和电子束感生电流象中的衬度是由禁带中的位错能级造成的,当位错心部有悬键时,禁带中就有相应的位错能级,因而表现出衬度,否则位错将不表现出衬度。近年来弱束技术证明,在 Ge, Si 和 III-V 族化合物中,绝大多数位错是扩展的,在形成部分位错时,为了降低位错心的键合能,位错心的破坏键将发生重建,重建的结果使位错线上绝大部分破坏键连接起来,不形成悬键,而仅在位错扭结处形成悬键^[7]。位错心部的重建可能使畸变能增大,但计算表明,畸变能很小,因此重建将使位错总能量降低。由于在 {111} 滑移面上,位错线易形成扭结而带有悬键,故位错在

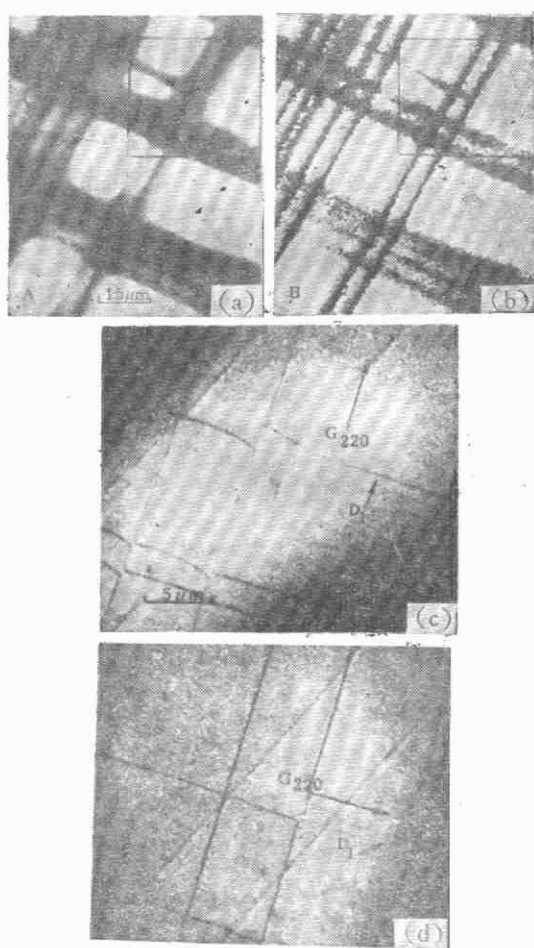


图 10 $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}_{1-y}\text{P}_y/\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ 异质结界面上的错配位错网

(a) 电子束感生电流象; (b) 阴极荧光象, $\lambda = 7900 \text{ \AA}$; (c) 衬度象, $g = (220)$; (d) 衬度象, $g = (224)$

电子束感生电流和阴极荧光象中,均表现出衬度^[8]。半导体的禁带较窄(约 1eV),因此位错能级可以产生红外辐射,当用可见光探测器探测时,位错呈暗线。金刚石和 MgO 晶体的禁带较宽,位错能级可产生可见光辐射,例如在金刚石中,位错能级可发绿光,故用可见光探测器探测时,位错呈亮线,这已为实验所证实。

图 10 中给出了 $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}_{1-y}\text{P}_y/\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ 异质结界面上的错配位错网的透射扫描电子显微镜的衬度象 [(c), (d)]、阴极荧光象 (b) 和电子束感生电流象 (a)^[8]。图 10(c), (d) 与 (a), (b) 中的黑框区域对应,在图 10(c) 中用箭头 D_1 标明的位错,在 $g = (220)$ 和 (224) 时消光 [见图 10(d)], 故其 $b = [110]$ 。此位错线的方向为 $[1\bar{1}0]$, 故它为在 (001) 面上的不动刃型位错。其它位错均为 60° 型位错。由图 10(a) 及 (b) 可知,此不动位错在电子束感生电流象及阴极荧光象中均不表现出衬度,原因在于处在 (001) 面上的不动位错很难形成扭结,故不带有悬键。最近,高分辨弱束技术证明,在 Ge 中存在非扩展的不动位错^[9]。

电子显微学中存在大量问题尚待进一步研究,透射扫描电子显微镜是探索这些问题的强有力的工具。

参 考 文 献

- [1] A. V. Crewe, *Electron Microscopy in Material Science*, Ed. U. Valdrè, New York, Academic Pr. (1971), 162.
- [2] A. V. Crewe and J. Wall, *Optik*, **30**(1970), 461.
- [3] G. Thomas and M. J. Goringe, *Transmission Electron Microscopy of Materials*, New York, (1979), 52.
- [4] E. Zeitler and M. G. R. Thomson, *Optik*, **31** (1970), 258; 359.
- [5] L. M. Brown, *Inst. Phys. Conf. Ser.* **36**©(1977), 141.
- [6] L. M. Brown, D. Fathy and U. Valdrè, *Electron Microscopy and Analysis*, Ed. by T. Mulvey, (1979), 137.
- [7] P. B. Hirsch, *J. Micro.*, **118-1** (1980), 3.
- [8] P. B. Petroff, R. A. Logan and A. Savage, *J. Micro.*, **118-3** (1980), 225.
- [9] A. Bourret and J. Desseaux, *Phil. Mag.*, **39-4** (1979), 405.