

用反射电子显微术对金刚石表面的研究

康 振 川

(北京市冶金研究所)

1982年5月10日收到

提 要

本文用反射电子显微术观察了合成金刚石表面,发现在金刚石表面存在大量的台阶和微晶。结果表明,合成金刚石的表面具有普通液态结晶的特征。

一、引 言

近年来,反射式电子显微术得到迅速发展。它克服了场发射离子显微镜只能观察点状几何形状样品的缺点,能研究大范围表面的微观形貌、化学成份和表面结构,具有很大的实用价值^[1]。Cowley 实验室对此进行了大量的研究,奠定了表面反射电子显微术的初步基础^[2-4]。1980年 Yagi 小组利用在 JEOL 100B 上装上了超高真空加热和喷镀装置,采用反射电子显微术观察了硅表面单层原子台阶以及表面结构转变^[5-7]。Cowley, Iijima, 徐统等人观察了硫化铅、铈化镓、铂、金等晶体表面的位错和层错^[8-10]。Yamamoto 把电子能量损失谱与反射电子显微术结合起来研究了磷化镓表面台阶的特征^[11]。本文是报告用反射电子显微术观察合成金刚石表面状态的结果。

二、材料和实验方法

观察所用金刚石是用特殊触媒制得的人工合成金刚石。金刚石经过在硝酸、硫酸中煮约 20 分钟,用蒸馏水冲洗并在丙酮中浸泡。而后放在钼片上在 3×10^{-6} 托真空中加热到 600—1000℃ 净化。取出后用干净镊子放在双折金网上夹好。并尽量选择晶体的观察表面平行于电子束。或把金刚石嵌入金棒上再经清洗后在 JEOL 100B 和 VG HB5 电子显微镜中观察。

反射电子显微术与透射电子显微术操作过程有些不同。首先应调节中间镜电流以及物镜电流,使之得到清晰的样品下边缘的像。其次,在暗场操作方式下,利用大角度双倾样品台倾动样品,在倾转中应尽量保持边缘像在荧光屏中心,在接近布拉格条件时会看到较强的反射衍射“影”。继续倾转直到出现反射衍射。再者,利用电子束倾动装置,使选择的反射衍射束尽量与仪器光轴相重。放入物镜光阑,转到像平面观察。扫描透射电子显微镜的操作也类似。利用 Cowley 发展的光学传递系统和电视显示系统按上述步骤操作。

三、实验结果与讨论

为了便于理解反射像形貌特征,我们用扫描电子显微镜拍摄了金刚石(100)面上螺位错周围的生长台阶(图1)。可以看出,表面上大的生长台阶,微小凹凸区。这清楚地表明它是由液态结晶而来的。然而,却难以分辨表面细节。采用反射电子显微术我们观察到以下结果。



图1 金刚石(100)表面螺位错周围的生长台阶 $\times 1660$

1. 表面台阶

图2是用 JEOL 100B 透射电子显微镜以反射电子显微术成像所获得的表面特征像。图2(b)表示成像时的反射电子衍射花样。电子束倾斜入射并近于平行于 $[001]$ 方向。 $[010]$ 取向约偏离水平方向 8° 左右。用(400)衍射斑成像,即(400)衍射束近于平行光轴。物镜光阑为 $10\mu\text{m}$ 。右下角表示放大率,横向与纵向放大率不同,这是反射电子显微像的重要特征之一。由图2清楚地看到在表面上存在大量台阶和位错露头。这些台阶的走向

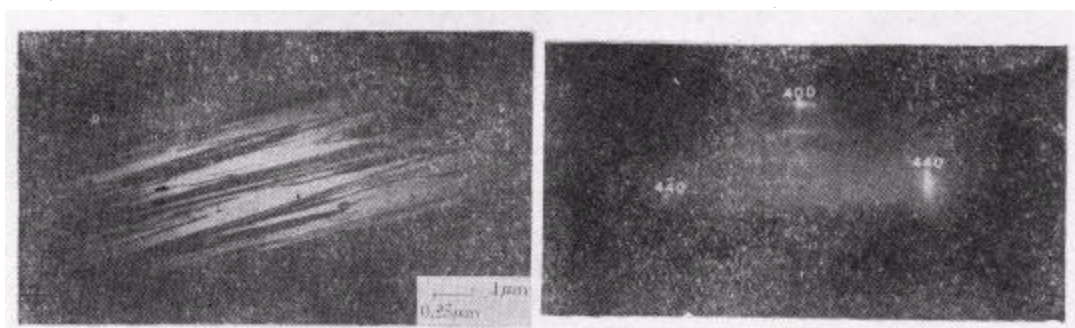


图2 用 TEM 反射式电子显微术拍得的金刚石(100)表面像(a)和反射电子衍射花样(b)。用(400)反射成像,很多沿 $[011]$ 或 $[0\bar{1}\bar{1}]$ 方向的表面台阶和位错表面露头

为 $[110]$ 或 $[1\bar{1}0]$,由于(100)面相对于光轴倾斜成很小的角度,所以它们之间的夹角直观上看去是锐角。在照片的上部有两个位错露头(标以字母“D”)。它的衬度特征是一侧发暗,一侧发亮。图3表示螺位错露头的衬度和其表面状态模型。由于左侧存在着台阶而

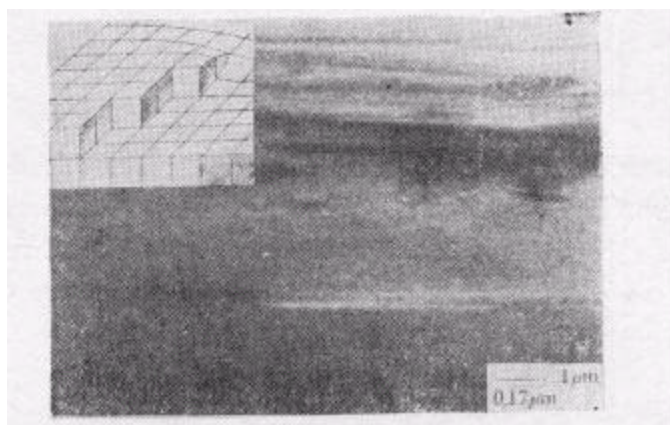


图3 螺位错表面露头衬度及其表面状态模型

右侧存在着晶面畸变,使右侧部分区域满足了布拉格条件.然而,基体只是接近满足布拉格条件,所以右侧为亮区而左侧为暗区.

在图 2(a)中有几个大暗带,这是由于正、负螺位错周围形成的凹凸区.可以看到,在这些区域内仍有一些亮线,它们是相应的台阶.

2. 表面微晶

图 4 表示存在于金刚石表面的“微晶”.插图表明其衍射花样.该照片是用扫描透射电子显微镜 VG HB5 拍摄.由于电子束是大角会聚束,所以衍射斑成为带.根据 Shell 定律,当透入晶体的电子束被反射出晶体时,在晶体和真空的界面处发生折射现象,出射

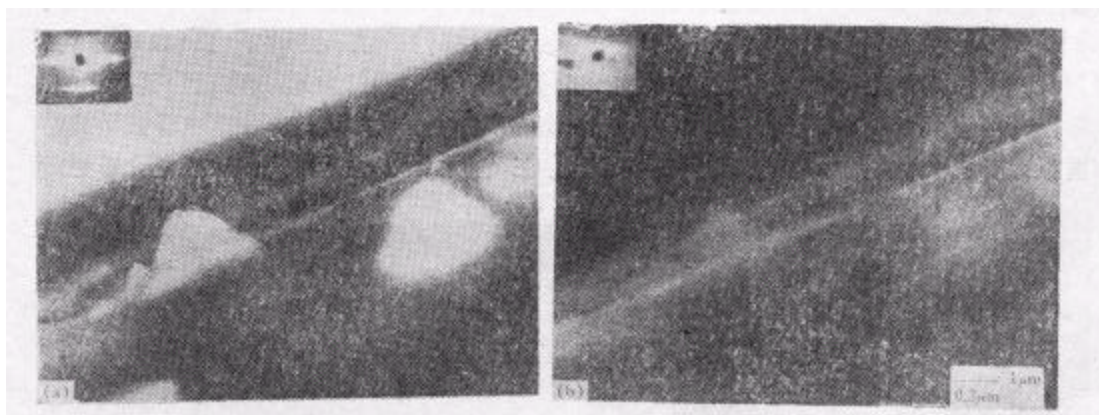


图4 金刚石(100)面上的表面微晶 (a)表示用透射和反射束成像,(b)表示只有反射束参加成像,清楚地表明,表面微晶生长特征

角发生改变:

$$n \cos \theta'_B = \cos \theta_B,$$

θ'_B 为计算的布拉格角, θ_B 为从界面的真空侧观察到的布拉格角.显然, θ_B 小于 θ'_B . 所以同一入射束透入晶体和反射出晶体的电子束,布拉格角会不同,从而使斑点产生分裂.当用光阑分别“套住”透射斑和反射斑时会看到不同区域的像. 图 4(a) 是透射和反射斑同

时通过光阑,而图 4(b) 只有反射斑通过光阑成像。它表明“微晶”是突出表面被电子束穿透,而亮线表示表面台阶。

被观察的金刚石是一个截八面体,被观察的面是 $\{100\}$ 面,如果 $\{111\}$ 面上的 $\langle 110 \rangle$ 型位错在表面露头,那么这种台阶的侧面仍是 $\{111\}$ 面。由于 $\{111\}$ 面是密排面,在结晶时生长快便可能形成小的“微晶”。

四、结 论

用反射电子显微术观察到人工合成金刚石表面上存在大量台阶(包括滑移和生长台阶)、位错露头 and “微晶”,所有这些特征都是液态结晶过程的自然结果。

感谢 Cowley 教授、徐统先生、赵伯麟老师以及本所一室等同志的指导和帮助。

参 考 文 献

- [1] J. A. Venables, *Electron Microscopy of Surface STEM in Solid State Sciences*, (1981), 136.
- [2] G. G. Hembree and J. M. Cowley, *Scanning Electron Microscopy*, 1(1979), 145.
- [3] G. G. Hembree, J. M. Cowley and M. A. Otooni, *Oxidation of Metals*, 13(1979), 331.
- [4] P. E. H. Jlund Nielsen, J. M. Cowley, *Surface*, 53(1976), 340.
- [5] K. Yagi *et al.*, *Surface Science*, 86(1979), 174.
- [6] N. Osakabe, Y. Tanishiro, K. Yagi and G. Hanja, *Surface Science*, 97(1980), 393.
- [7] N. Osakabe, Y. Tanishiro, K. Yagi and G. Hanji, *Surface Science*, 102(1981), 424.
- [8] J. M. Cowley, *Surface Studied using Reflection Microscopy in a STEM Instrument*, *STEM in Solid State Science*, (1981), 171.
- [9] P. S. Turner and J. M. Cowley, to Published in *Ultramicroscopy*.
- [10] S. Iijima, T. Hsu, to be Published.
- [11] N. Yamamoto to be Published.

A STUDY OF SYNTHETIC DIAMOND SURFACE USING REFLECTION ELECTRON MICROSCOPY

Kang Zhen-chuan

(Beijing Metallurgical Research Institute)

ABSTRACT

The surface of synthetic diamond have been observed employing reflection electron microscopy with both TEM and STEM instrument. It is found that there are slip steps of screw dislocations, growth steps and microcrystals on the surface. The result shows that the surface of sythetic diamonds is characteristic of crystallization from solution.