

用光学方法研究晶体生长和缺陷

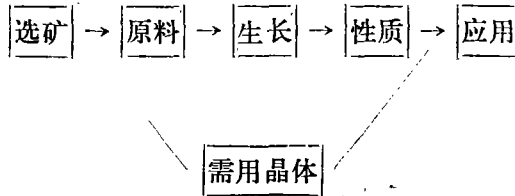
——日本东北大学 小松 啟教授讲学

(一) 晶体生长有三个重要环节 ①理论研究; ②实验研究; ③性质的研究。

晶体生长的理论研究, 按 N 、 F 、 $Mott$ 分为以下三个方面:

- (1) 生长速度的研究 (过饱和度和各晶面发展有关的原子论的处理);
- (2) 晶体形态的研究 (热, 溶质扩散和树枝状晶体等的形成问题);
- (3) 晶体不完整性的研究 (与生长过程位错的引入, 组织形成相关的问题)。

晶体生长的实验研究包括如下几个方面:



通过反复实验, 达到重复、可靠。

晶体性质的研究包括结构, 纯度, 相, 完整性, 表面等。其中表面是最重要的。结晶生长是通过表面形成的, 晶体延续生长还是停止生长全由表面决定, 因而很多缺陷镶嵌在表面里, 表面是研究的中心。通过表面和内部关系的研究, 确定晶体生长的性质。

(二) 从使用光学显微镜的角度看, 晶体生长的研究大致分为以下四个问题:

- (1) 外形 (形貌学, 晶相变化)
- (2) 表面 (生长层的垒积, 它的厚度, 形态, 位错的移动痕迹)
- (3) 内部 (畸变、累带构造、破裂、包裹物, 线状缺陷, 系层结构)
- (4) 环境 (界面、浓度分布、浓度梯度)

检测这些的光学手段有:

- ①明视场 ②斜光 ③暗视场 ④纹影法 ⑤偏光 ⑥相位差 ⑦差分干涉 ⑧干涉相位差 ⑨红外 ⑩紫外 ⑪双光束干涉法 ⑫多光束干涉法 ⑬光切断 (光投影) ⑭反射测角等。各种方法的纵、横分辨能力示于图 1

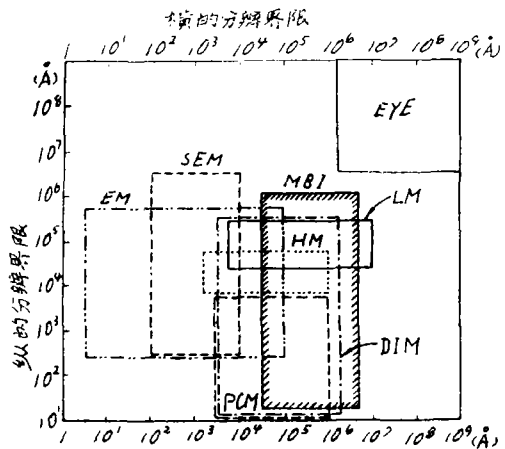


图 1 各种显微镜的分辨界限

- | | |
|------------------|--------------|
| MBI: 多光束干涉法 | PCM: 相位差显微镜 |
| LM: 光学显微镜(NA0.1) | SEM: 扫描电子显微镜 |
| HM: 光学显微镜(NA1.4) | EM: 电子显微镜 |
| DIM: 差分干涉显微镜 | |

(一) 相位差显微镜

人的眼睛和胶卷等感光材料对光强（振幅的平方）和颜色（波长差）有感觉、对相位差没有感觉。因此，象玻璃板那样透明均质材料中有折射率高的部分无法用通常的方法看出来。

现在看一看平面波通过玻璃板的情形。象第2图表示的那样，通过折射率高的部分的光波和通过折射率低的部分的光波之间产生相当于光程差（折射率和厚度的乘积）的相位差 Δ 。因此玻璃板中折射率分布状态以相位差的形式被保存在变形波里。曲线叫做“相位分布曲线”。如果能把这个相位分布曲线转换成振幅分布曲线，就把相位变化的状态表示成光强对比度，能以肉眼看见又能拍摄照片。

首先看一下相位差和振幅差之间的关系。第3图中P波是通过折射率高的部分的光波，它与通过其周围均匀玻璃板部分的S波相比，只迟相位 Δ 。D波是从P波减去S波后得到的，从图中知道它是比S波仅迟 $\frac{1}{4}$ 波长的一种光波。根据 $abbe$ 成像理论，这是一种衍射光，也是与成象有关的一种光波。

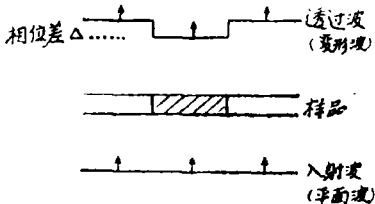


图2 透过波的相位变化

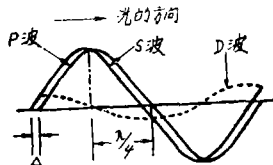


图3

根据 $abbe$ 理论，显微镜的光路如第4图所示。由对象物衍射的衍射波（D波）和通过对象物周围的直接波（S波）在成象面上再合成（ $D+S=P$ ）后成象（P波）。图4只表示0次衍射波（直接波）和一次衍射波。（高次衍射波只与再现对象物的清晰度有关，对比度不起本质的作用，因此省略。）用实线表示的直接波和虚线表示的衍射波，同时在物镜后侧的焦点面上彼此以等次数的点成象。在零次衍射波的成象点中（直接光）放置小的遮光板，切断直接波，只通过衍射波，那末，在暗的背景中有折射率变化的部分却看到光辉，得到暗视场象。

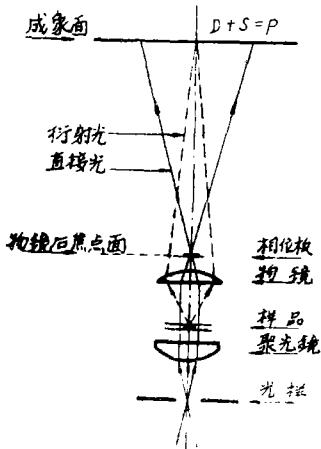


图4 透过相位差显微镜光路

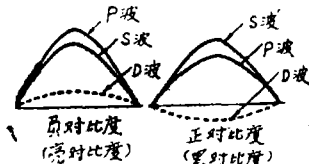


图5

相反，实验证明截止衍射波只通过直接波，那么成象面照得明亮，得不到象。这是因为直接波没通过成象的对象物，当然不包括任何与成象有关的信息。从这点知道，直接波与背景的对比度有关，衍射光与图象的形成有关。从而直接波（ S 波）里加点别的花招，则不仅不妨害象的形成，而在成象面上必然得到明暗的对比度。因此，物镜后焦点处放置相位物体，使得 S 波比 D 波超前或落后 $\frac{1}{4}$ 波长。图5表示了在图3中 S 波超前或落后 $\frac{1}{4}$ 波长的结果。可以看出，具有相等振幅的 S 波和 P 波之间产生振幅差，因此图3中出现在 S 波振幅重迭的背景中以 P 波重迭的对象物的象。图5（ a ）叫做负对比度（或者亮对比度），折射率高的部分显得更亮。图5（ b ）叫做正对比度（或者黑暗对比度），折射率高的部分显得更暗。

以上粗略地说明了光通过透明体时的相位显微镜的原理。这个原理同样适合于反射型相位差显微镜。像图6所示的那样平面波射进对象物时，一般产生相应它表面形态的相位不齐的反射波，反射光的场合也同样，相位不齐与对象物的光程成正比。比如晶体表面存在 10 \AA 高的台阶，反射波产生 20 \AA 的相位差。这个相位差变换成振幅差的话，则沿着台阶产生明暗的对比度。要实现反射型显微镜，按图7光路进行。

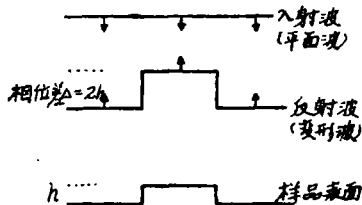


图6 反射波相位变化暗视场对比度的情况

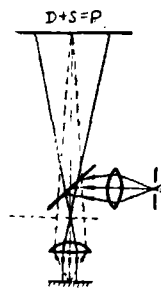


图7 反射型相位差显微镜光路

用相位差显微镜观察的图象有如下特征：

- ① 极微小的相位差以明暗的对比度表现出。它的检测界限为 $1/2000$ 波程度。
- ② 明暗的对比度随着相位板（超前或者落后 $1/4$ 波长）可以逆转。尤其是改变相位板的吸收率时可以得到不同程度的对比度。
- ③ 折射率差虽然极微，但可以决定哪一个地方折射率更高。又，在反射型中存在极微的高度差时，可以判断哪个地方相对高。
- ④ 由于相位差的灵敏度在全部视场中均匀，所以一次可知道相位分布。
- ⑤ 因为相位差效果里包括其他暗视场效果和纹影效果的重迭，因此要注意从得到的图象中推出实体。
- ⑥ 如果焦点不准确，对比度有逆转的可能。
- ⑦ 相位分布曲线的曲率变化缓慢的时候，入射光弯曲不同的方向，对后侧焦点的相位板来说，全体直接光不产生相位变化，明显地减低相位差效果。以上①~④是优点，⑤~⑦是缺点。

这个显微镜能观察数埃量级的生长台阶。因为螺旋位错作为媒介的螺旋生长模型可保存着伯格失量，而且保证台阶高度均匀。因此，测定整个螺旋生长丘的高度，用它的生长层的层数除以高度，就可得到最小单元台阶的高度。图8是用相位差显微镜照的碳化硅的螺旋生长花纹。

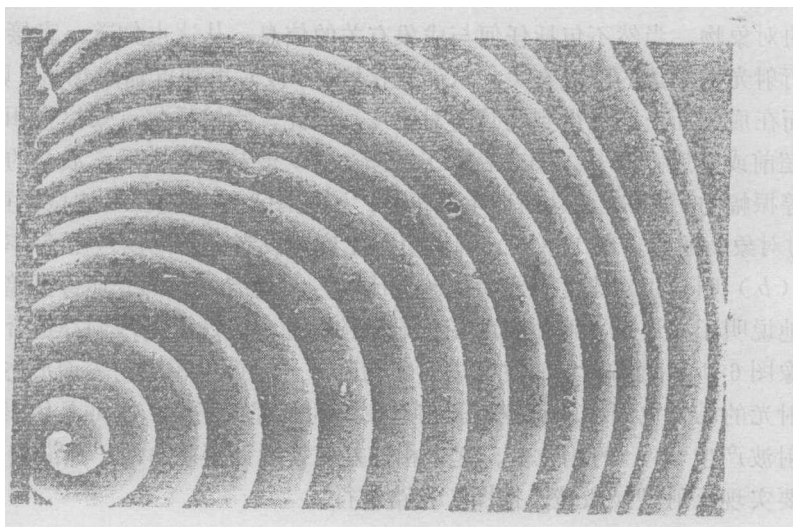


图8 碳化硅的螺旋生长花纹（正片反射相位差显微镜照片×200）

（二）差分干涉显微镜

差分干涉显微镜是利用光的干涉现象把相位差转换成颜色的对比度。干涉显微镜与衍射不同，可以说是把光的干涉法吸入到显微镜。因此，在相位显微镜里不可避免的光圈在干涉显微镜里是不存在的，从而适合于定量的测定。

这里叙述的干涉显微镜是组合了偏光分离器和偏振镜，检偏振器等，是属于偏光型干涉显微镜。用偏光分离元件，把直线偏光可分离成振动方向互相垂直，只离开一定距离的，耦合的两个直线偏光（O波和E波）。在实际用的时候把沙巴板或者渥拉斯顿棱镜作为偏光分离器。图9是用水晶（单轴性正号晶体）作成的偏光分离器。

如果把白光通过沙巴板后得到的直线偏光O波和E波（它的分离距离为S），入射到象图2同样的玻璃板的话，它们的变形波就象图10那样。再把这个O波和E波通过检偏振器使它干涉，那么在折射率高的部分和低的部分的境界上产生相当于位相差 Δ 的干涉颜色。这个时候背景相位差是零，成为黑暗。

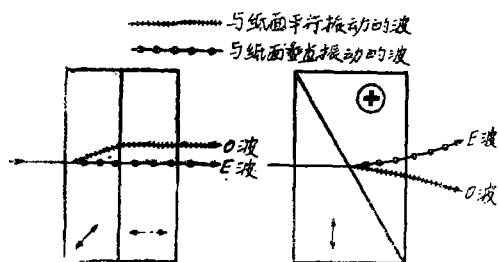


图9 两种偏光分离器

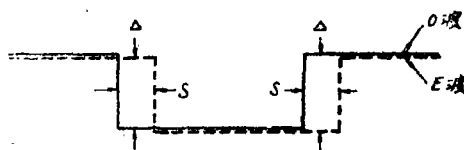


图10

现在，若把这个沙巴板相对入射光线倾斜的话，则O，E两波之间产生相位差 Δ_0 ，又，利用偏光分离器的移动，能任意地改变O、E两波之间相位差 Δ_0 。也就是说可以自由地改变背景的颜色。图11表示了这种情况。这两束光射入偏振镜使它产生干涉，相位差 Δ_0 的干涉颜色作为背景， Δ_1 和 Δ_2 的相位差的干涉颜色出现在有相位梯度的地方。从而玻璃板中折射率变化的部分由颜色的对比度来表现出来。从图11知道 Δ_1 和 Δ_2 有如下关系。

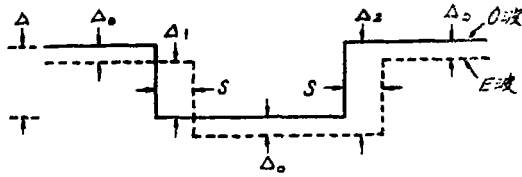


图11

$$\Delta_1 = \Delta - \Delta_0$$

$$\Delta_2 = \Delta + \Delta_0$$

因为有如上关系，产生对 Δ 对称关系的干涉色。图12表示出用沙巴板的透过型干涉显微镜的情况。

用差分干涉显微镜照的图象有如下特征：

- ① 表面的凸纹和微小的折射率变化看到立体感。
- ② 即使相位差很大的部分也不产生晕，看得清晰。
- ③ 能连续改变由干涉颜色产生的对比度，把缓慢的相位变化的曲线，看到自然的立体感。
- ④ 因为不是点光源，而是使用了扩展的光源，低反射率的表面和厚的透着用样品，也得到明亮的视场。
- ⑤ 判断相位斜度的正负较困难。因此对有折射率斜度的地方，判定哪一处有更大的折射率，判定哪一处更高是困难的。

图13是用差分干涉显微镜照的气相生长的SiC的生长花纹和沟。通过分析，清楚地看到螺旋生长花纹及其内部管状缺陷的状态。

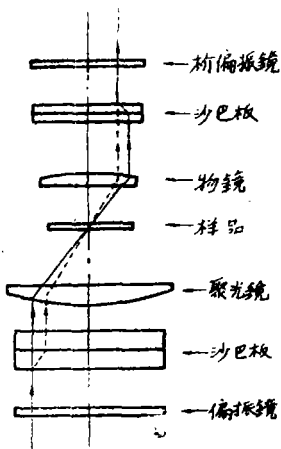


图12 透过型干涉显微镜光路

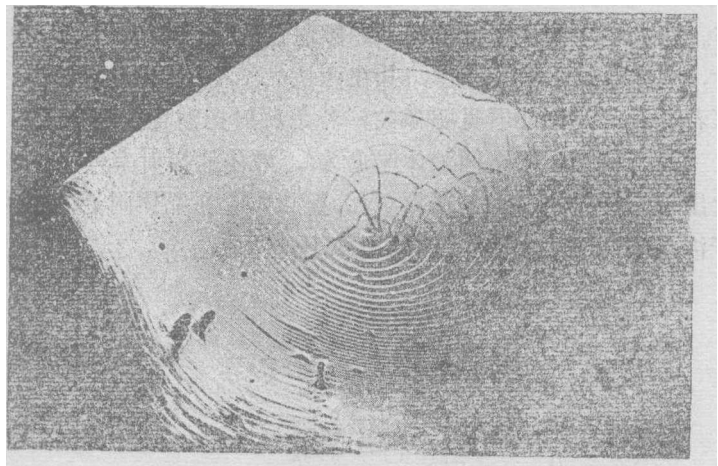


图13 碳化硅螺旋生长花纹和沟（差分干涉照片×20）

(三) 透过暗视场照明法

这是利用了达尔现象，检测通常光学显微镜分辨率以下微粒子的方法。用暗视场照明能检测晶体内部的夹杂物、气泡、裂纹等。用这个方法观察气相生长的碳化硅，发现了表面的螺旋和内部缺陷之间的对应关系。图14就是一例。助熔剂生长的YAG表面生长小丘和内部缺陷的关系，也得到了很感兴趣的东西。

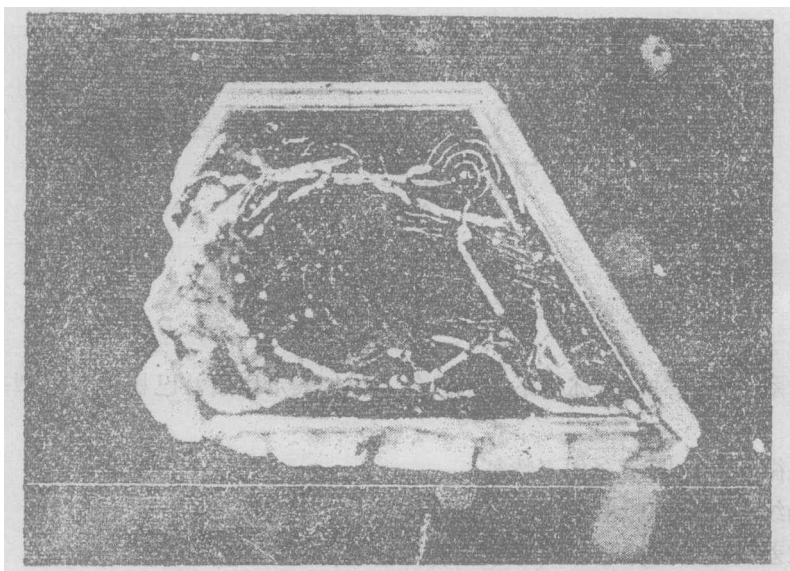


图14 碳化硅的生长表面和内部缺陷的对应 (透过暗视场照片×20)

*V. Vand*使用1毫瓦的氩—氦激光器,用如图15所示的装置,观察了 MgO ,红宝石等的内部缺陷。如用大功率激光光源,有可能看到粒径到 100 \AA 。为了照相,电机带动聚光用的物镜,使激光的平行光束在水平方向上扫描。用 $1/32$ 秒得照片。

(四) Berg实验

图16是 *Berg* 实验装置的原理图。他的目的是弄清从溶液中生长晶体的机理,其焦点放在「生长速度」和「直接接近于晶体的溶液浓度」方面。在镀银的两块光学平镜中间放入 $NaClO_3$ 过饱和溶液和厚 0.1mm 的微小晶体,控制对流,通过调整,清楚地看出二维的浓度分布。让光学平镜从平行位置稍许倾斜点,使液相成为薄的楔形状。如用平行单色光从下面照射,则光通过溶液和晶体,并在两块光学平镜间多次反射,干涉,就能得到等厚干涉条纹(若透过光,则能看见明条纹,若是反射光则看到暗条纹)。

设两块光学平镜间液体厚度为 t ,液体的折射率为 μ_0 ,单色光的波长为 λ ,则在满足下式时出现干涉条纹 $2\mu_0 t = N\lambda$ (N 为整数) ①在晶体附近的溶液折射率变为 μ_1 时,对应于它的干涉条纹间隔也变为 n ,而且有如下关系式:

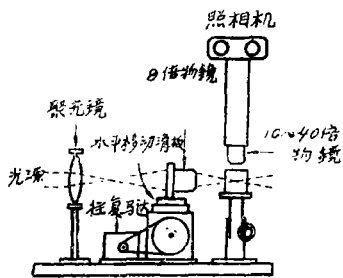


图15 Vand的激光超倍显微镜

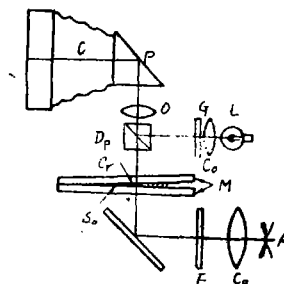


图16 Berg 实验

A: 汞弧光灯 G: 光栅 Co: 聚光器 Dp: 棱镜 F: 滤光器 O: 物镜
M: 分光镜 P: 棱镜 Cr: 晶体 C: 照相机 So: 溶液 L: 灯

$$2\mu_1 t = (N + n) \lambda \quad \text{②}$$

从②式减去①式可得：

$$\mu_0 - \mu_1 = -n\lambda/2t \quad \text{③}$$

这里， λ 为已知，因 t 为实验求出，所以，要想知道相对折射率变化 $(\mu_0 - \mu_1)$ ，若能实测出干涉条纹的相对位移量 n 就可以了。如果预先由实验测 μ_0 ，那么可以求出绝对折射率的变化。

*Berg*得到的结果。推翻了以往常识，归纳为：

- ① 溶液的浓度，沿同一晶面也不同，中部最低，拐角最高。
- ② 垂直晶面的溶液浓度梯度也不同，中部最高，朝拐角逐步减少。
- ③ 从结晶中心向拐角溶质移动，即不得不假定存在吸附层。

张仁化 董秀淑 崔凤柱整理