

暗视场及相衬显微术及其对 Nd:YAG 晶体中缺陷研究

邓佩珍 乔景文 胡兵
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

暗视场及相衬显微术的分辨率可达 $10\sim 500\text{\AA}$, 采用这两种技术可以十分清晰地观察到用引上法及温梯法生长的 Nd:YAG 晶体中的点缺陷集团, 小尺寸位错环, 螺旋位错, 片状缺陷的精细结构。特别是观察到非缓饰刃位错及混合位错的图像。对非缓饰位错的观察已用化学腐蚀, 光双折射照相术及 X 射线形貌术作了证明。

关键词: 相衬显微术, 暗视场, 缺陷。

一、引 言

普通光学显微镜受到入射光波长及物镜镜口率的限制, 其最大分辨率仅为 $0.2\ \mu\text{m}$, 无法分辨微小尺寸物体的结构。暗场法及相衬显微术分辨率较之普通光学显微镜提高 $2\sim 3$ 个数量级, 可以观察到从 $10\sim 500\ \text{\AA}$ 的亚微观粒子图像。日本 Sunagawa^[1] 曾用反射相衬显微术观察到晶体中台阶高度为 $2.3\ \text{\AA}$ 的螺旋生长层, 对晶体生长理论的研究起了推动作用。

本文运用暗场法及相衬显微术成功地显示了用引上法及温梯法^[2] 生长的 Nd:YAG 晶体亚微观尺寸的点缺陷集团及多种位错形貌。并用化学腐蚀, 光双折射照相术以及 X 射线形貌术进行了对比和严格的验证。

二、暗场法与相衬法原理

通常所观察的物体可分为两类: 第一类是当光通过物体后, 其振幅(强度)会发生变化的振幅型物体, 第二类是当光通过这类物体后, 只有位相变化而振幅不变的位相型物体。人们是无法直接看到这类物体的结构。为了观察它的结构, 通常将其位相分布通过阿贝成像原理及采用具有特殊功能的空滤器转换为振幅(或光强度)分布。

阿贝在显微镜成像理论^[3] 中认为物面如同一个衍射光栅, 入射平行光通过时, 受到衍射而形成向各方向传播的平面波, 这些衍射光在后焦面上形成夫琅和费衍射图样, 焦平面上的每个点可看成相干次波源, 其光强正比于各点振幅平方, 这些次波再叠加形成物面的像。这个成像过程实质上是二次衍射即两次傅里叶变换过程。设位相物体的复振幅分布 $E(x, y)$

为

$$E(x, y) = \exp[i\varphi(x, y)] = 1 + i\varphi(x, y) - \frac{1}{2}\varphi^2(x, y) - \frac{1}{6}\varphi^3(x, y) + \dots, \quad (1)$$

式中 $\varphi(x, y)$ 为相位函数。当 $\varphi(x, y)$ 很小时, (1) 式可近似为

$$E(x, y) \approx 1 + i\varphi(x, y). \quad (2)$$

$E(x, y)$ 的傅里叶频谱 $\mathcal{E}(u, v)$ 为

$$\begin{aligned} \mathcal{E}(u, v) &= \iint_{-\infty}^{\infty} [1 + i\varphi(x, y)] \exp[-i2\pi(ux + vy)] dx dy \\ &= \delta(0, 0) + i\Phi(u, v). \end{aligned} \quad (3)$$

(3) 式表明频谱函数 $\mathcal{E}(u, v)$ 由两部分组成, 其中 $\delta(0, 0)$ 对应零级谱, 与位相函数无关, 是由未经衍射的直射光形成的像点, 而 $i\Phi(u, v)$ 则表示被位相物体衍射的各空间频谱分布。

暗场法是在频谱面上放置一小圆屏空间滤波器以滤掉零级频谱 $\delta(0, 0)$, 则透过频谱 $\mathcal{E}'(u, v)$ 为

$$\mathcal{E}'(u, v) = i\Phi(u, v), \quad (4)$$

再经一次逆变换, 在像平面 (x', y') 上的复振幅分布 $E(x', y')$ 和光强分布 $I(x', y')$ 分别为

$$E(x', y') = \iint_{-\infty}^{\infty} i\Phi(u, v) \exp[i2\pi(ux + vy)] dx dy = i\varphi(x', y'), \quad (5)$$

$$I(x', y') = |\varphi(x, y)|^2. \quad (6)$$

因此, 在像面上得到光强分布正比于物体位相分布的平方, 实现了将位相分布转换为振幅分布的目的。

相衬法也是通过空间滤波器将物体的位相分布转换为振幅分布。但所用的空间滤波器(相板)不是简单地滤掉零级谱, 而是在相板中心镀以一定厚度的膜层, 使零级谱的振幅透过率 t 作适当地衰减, 即 $0 < t < 1$, 同时又使高级频谱产生一个 $(\pi/2)$ 的位相移动。在加入相板后空间滤波器的透过率函数 $H(u, v)$, 像面复振幅分布 $E(x', y')$ 和光强分布 $I(x', y')$ 分别为

$$H(u, v) = \begin{cases} \pm it, & \text{在 } \delta(0, 0) \text{ 范围内} \\ 1, & \text{其他频谱} \end{cases} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} E(x, y) &= \iint_{-\infty}^{\infty} \mathcal{E}'(u, v) \exp[i2\pi(ux + vy)] du dv \\ &= \iint_{-\infty}^{\infty} [\pm it\delta(0, 0) + i\Phi(u, v)] \exp[i2\pi(ux + vy)] du dv, \end{aligned} \quad (8)$$

$$I(x', y') = |E(x', y')|^2 = t^2 + 2t\varphi(x, y) + \varphi^2(x, y). \quad (9)$$

当 $\varphi(x, y)$ 很小时, 可以忽略 $\varphi^2(x, y)$ 项得

$$I(x', y') \approx t^2 \pm 2t\varphi(x, y). \quad (10)$$

由此得到相衬法的像面光强分布与物体的位相分布成线性关系, 克服了暗场法的不足。用相衬法所能观察的物体的最小位相变化值与相板的透过率 t 有关, 当 $t=0.01$ 时可观察到最小位相变化 $\Delta\varphi=0.0001$ rad, 相当于光程差值 $\Delta \approx 0.1 \text{ \AA}$, 因此用相衬法可以观察到一

些非常低衬度的物体,但值也不能过小。当 $t \rightarrow 0$ 时,根据(9)式相衬法则变成暗场法。

下面用阿贝成像理论所作的光波合成图以说明位相物体如何在相衬场中实现位相分布转换成振幅分布的过程。在显微镜中放置一很小的物体,经入射光照射后,物体的图像(光波) Y_B 是由直射光 Y_A 与衍射光 Y_C 之间的干涉而形成的即

$$Y_B = Y_A + Y_C, \quad (11)$$

(11)式亦可写成

$$Y_C = Y_B - Y_A = \text{图像光波} - \text{零级光波}。 \quad (12)$$

如图 1, 2, 3 所示,图 1 指振幅型物体在亮场中的情况。图 1(a)是在光通过振幅型物体后光波振幅改变的情况,在虚线 B 处光波 B 的振幅减小。图 1(b)是根据阿贝成像原理所作的光波合成图;其中 Y_C 相对 Y_A 作 180° 相位移,所得物体的图像代表物体原有形貌。

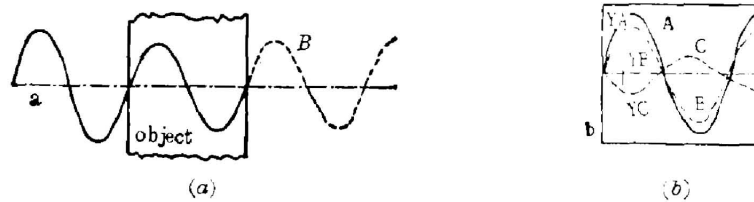


Fig. 1 Amplitude object in brightfield

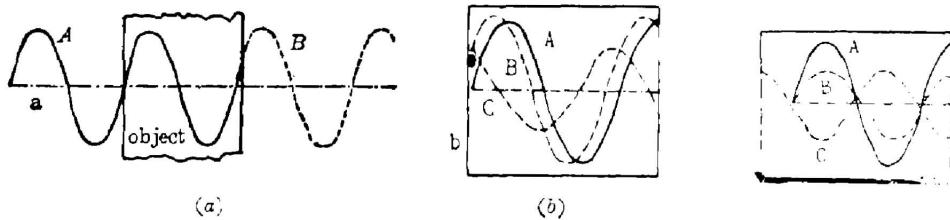


Fig. 2 Phase object in brightfield

Fig. 3 Phase object in phase contrast

图 2 指十分小的位相型物体在亮视场中的情况。图 2(a)表明当入射光通过此位相物体后光波的振幅不发生任何变化。图 2(b)是根据阿贝成像原理 $Y_B = Y_A + Y_C$ 作的光波图,从中看到当光通过物体后只有光波的位相移动而无振幅变化,因而看不到物体的图像。图 3 指一个很小的位相物体在相衬场中的情况。由于直射光从左向右作 90° 的位移,而使衍射光 Y_C 相对直射光 Y_A 作 180° 位移,物体的图像光波 Y_B 又代表振幅图像光波,与图 1(b)相似。这就使原来看不见的物体位相分布转换成可见的振幅分布,从而被观察到,并由于直射光的减弱而使图像更清晰。

暗场法是利用被检物体的反射及衍射光形成的图像而进行观察的,当物体有微小折射率变化时则在暗场中出现亮像,特别适用于点状物体,线状及微裂隙的观察。有时暗场法与相衬法所观察的物体图像相似,但相衬法对样品表面光洁度及厚度等要求更严格,适用于观察物体内部的精细结构。暗场法可用较厚的样品,适合于观察缺陷的空间分布状态。

三、实验部分

西德莱芝大视场显微镜备有暗视场法及相衬显微术的全部附件。即装有暗场法所用空

间滤波器及相衬法所用相环的聚光镜, 以及装有相板的一组相衬物镜。样品经机械研磨及抛光后即可观测及照相, 并根据研究工作的需要作透射, 偏光, 光学腐蚀及 X 射线形貌术的实验。

四、实验结果和分析

1. 点缺陷的观测

通常用透射光照明的显微镜其最大分辨率为 $0.2\mu\text{m}$, 无法看到一些微小尺寸的散射颗粒或包裹物的精细形貌, 用光双折射貌相法(分辨率 $\sim\mu\text{m}$)亦只能观察到散射颗粒所引起的四重及二重对称应力图。采用暗场法及相衬法则清晰地观察到“米”字形散射颗粒的结构及形态。图 4 是电阻炉引上法生长的 Nd:YAG 晶体中两种形态散射颗粒的结构均是由许多更小尺寸微粒所聚集而成的点缺陷集团, 图 4(a) 的散射颗粒(A)中心有一个大的沉积粒子, 经 X 射线能谱(EDX)测定此点钕浓度含量较高, 可以认为是由于富钕沉淀粒子引起大量点缺陷的聚集而形成的有序化点缺陷集团, 其中有三个明显的聚集方向, 即 $\langle 121 \rangle$, $\langle 211 \rangle$, $\langle \bar{1}21 \rangle$ 。图 4(b) 的散射颗粒(B)中心有一环面, 形成类似向日葵的形状, 其中有一点缺陷的聚集方向为 $\langle \bar{1}21 \rangle$ 。

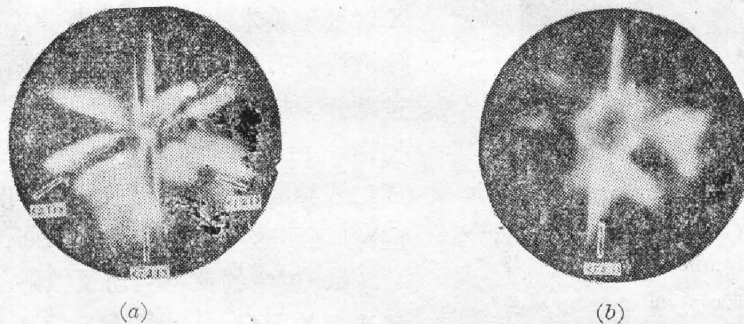


Fig. 4 The morphology of “*”-shape scattering particles A, B (under phase contrast and dark field microscopy)

(a) Morphology of particle A

(b) Morphology of particle B.

2. 微小尺寸位错环的观测

在温梯法生长的 Nd:YAG 晶体中有时存在着大量尺寸在 $0.05\sim 0.1\text{mm}$ 左右的散射颗粒, 在正交偏光下分别呈四叶应力花瓣图像, 仔细观察其应力花瓣并不对称, 如图 5(a)、(b)所示。用普通光学显微镜已无法分辨这类散射颗粒的细节, 用相衬法则清晰地显示出它们是一些微小尺寸的位错环。图 5(a) 是位错环 1 的应力图, 是由一垂直于纸面及两个与纸面斜交的位错环组成的。图 5(b) 是位错环 2 的应力图, 其中心有一大的沉积粒子。这些位错环均由于初期生长时化学组份的轻微偏离所形成的间隙环或空位环, 反之也由于它们的形成而容纳了化学组份的轻微偏离。

3. 非装饰刃位错, 混合位错的观测

样品是用温梯法生长的 (111)Nd:YAG 晶片, 经化学腐蚀后得到标准的正三角形位错蚀斑图。图 6 是用暗场法得到的位错线与其蚀斑对应的照片。图 6(a) 为具有不同(用劳厄

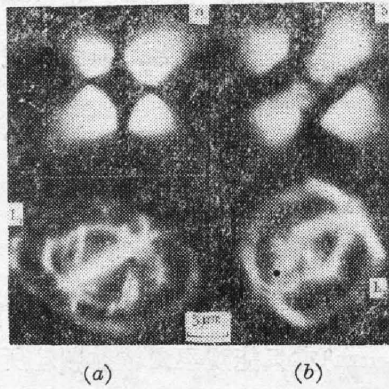


Fig. 5 The small dislocation loops (under phase contrast microscopy) and birefringence image(under crossed polarization)

- (a) Birefringence image of dislocation loop 1
- (b) Birefringence image of dislocation loop 2

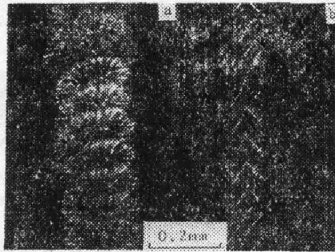


Fig. 7 Very fine structures of defects in Nd:YAG crystals were displayed by phase contrast microscopy

- (a) Helical dislocation
- (b) Pileup dislocation decorated

如上所述，相衬法对观察物体中极小的折射率变化十分灵敏，其轴向分辨率的提高为一般光学显微镜所不及。且比起显微术所得缺陷图像更精细和清晰，如图7所示。图7(a)是螺旋位错形态，极清晰地显示出位错线围绕沉积粒子作攀移运动而形成螺旋的过程以及每个环面内辐射状排列的细小沉积粒子形貌。图7(b)显示在直的位错线右侧有与其相交

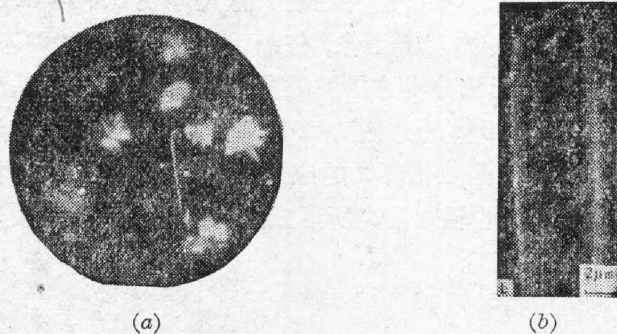


Fig. 8 The plate-like defects in Nd:YAG crystals (under darkfield microscopy)
 (a) The scattering particles and plate-like defects (b) The magnification of plate-like defect

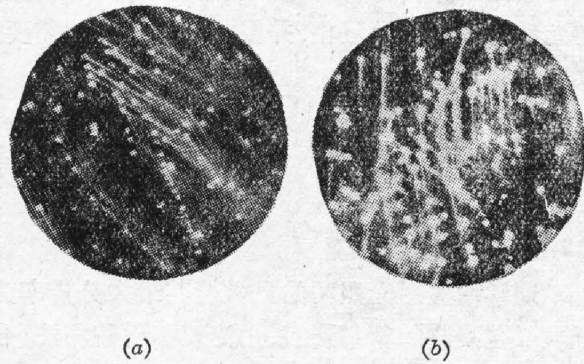


Fig. 6 One-to-one correspondence between single etch pit and view end-on dislocation (under darkfield microscopy)

- (a) Edge dislocation with different Burgers vectors
- (b) Zigzag and helical dislocations

法确定的)柏格氏矢量的单根刃位错线与其露头处蚀斑的对应图。在正交偏光下观察其中的位错线露头为典型的刃位错双折射应力图，用X射线形貌术的位错消光规律亦判明这些单根位错线为刃位错。图6(b)是用暗场法显示的经过割介。扭折及攀移运动所形成的折线和螺旋位错。由于图6(a)、(b)中每根位错线的露头或折线螺旋的结点露头处均与单个蚀斑相对应，则证明这些位错均属非缀饰位错。

4. 位错的攀移运动及散射颗粒向着位错线聚集的图像

一定角度($1^{\circ}\sim 30^{\circ}$)的短线或折线,在线上聚集有散射颗粒,其形貌与电镜^[9]所观察到的 Cu 7%-Al 合金中的位错塞积群极为相似。散射颗粒经放大后表明与图 4(a)的辅射颗粒结构完全相同。图 7 的位错线均由散射颗粒所缀饰,因而为缀饰位错。

5. 片状缺陷

用暗场法清晰地显示出电阻炉生长的晶体中片状缺陷形貌,如图 8(a)所示。图 8(b)是片状缺陷的放大图像,这与 Tanner^[10]用 X 射线透射形貌术在硅单晶中所观察到的倾斜型堆垛层错极相似。这是首次用光学方法得到的面缺陷形貌图像。

五、结 束 语

我们首次运用暗场及相衬显微术成功地观察到 Nd:YAG 晶体中的点、线及面缺陷形态缀饰位错,非缀饰刃位错及混合型位错。相衬法适用于观察缺陷的精细结构,暗场法特别适宜观察晶体中点状缺陷及微裂,如图 9 是用暗场法所得在蠕线处产生的裂隙图像。暗场及相衬显微术扩展了光学显微镜的使用范围,能观察到一些用扫描电镜(分辨率为 $30\sim 200\text{\AA}$)才能观察的图像。但其对样品制备条件的要求上较之扫描电镜要求低得多,而两者相结合并配合 X 射线能谱分析,则对被检物及缺陷的图像及成份分析更为有利。

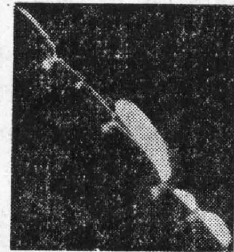


Fig. 9 The crack on the helical dislocation (under darkfield microscopy)

参 考 文 献

- [1] I. Swngawa, P. Bennema; *Preparation and Properties of Solid State Materials* (Marcel Dekker, Inc., New York and Basel, 1982), Vol. 7, 43.
- [2] Zhou Yongzong; *J. Crystal Growth*, 1986, **78**, No. 1 (Oct), 31.
- [3] 梁铨庭编;《物理光学》(机械工业出版社,北京,1981),159.
- [4] 邓佩珍,张守都等;《硅酸盐学报》1979, **7**, No. 3 (Sep), 183.
- [5] 邓佩珍,乔景文等;《硅酸盐学报》,1987, **15**, No. 2 (Apr), 168.
- [6] Deng Peizhen; *J. Crystal Growth*, 1987, **82**, No. 4 (Apr), 579~583.
- [7] 乔景文,邓佩珍;《人工晶体》,1987, **16**, No. 1 (Mar), 69.
- [8] 邓佩珍,胡兵;《光学学报》,1988, **8**, No. 7 (Jul), 625~630.
- [9] S. Amelinckx; *The Direct Observation of Dislocation*, (Academic Press, New York and London, 1954), 369.
- [10] B. K. Tanner; *X 射线衍射形貌术*(科学出版社,北京,1985), 740.
- [11] H. Komatsu;《人工才メソンの评讲》(岩石矿物矿床学会誌,特制号)3号,别刷(1982), 92.

Study on defects in Nd:YAG crystals by darkfield and phase contrast microscopy

DENG PEIZHEN, QIAO JINGWEN AND HU BING

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

(Received 10 July 1987; revised 11 September 1987)

Abstract

The resolution of Darkfield and Phase Contrast Microscopy is up to $10\sim 500\text{\AA}$. The fine structure of point defect clusters, small size dislocation loops and helical dislocations in Nd:YAG crystals can be observed very clearly by these techniques, especially, the image of the undecorated edge dislocations and mixed dislocations in crystals have also been got from them. The observation of undecorated dislocations was confirmed by chemical etching, optical birefringence and X-ray topography.

Key words: phase contrast microscopy, darkfield, defects.