

# 晶体表面微观结构的反射电子 显微术观察\*

李宗全 沈辉 秦勇

中国科学院固体物理研究所, 合肥, 230031

1990年3月27日收到

本文用反射电子显微术观察了球状铂单晶表面的微观结构, 分析了单晶形成中内部缺陷的变化. 当球状液滴凝固时, 晶体中存在位错、小角晶界等缺陷. 在其后的退火过程中, 晶粒内部的位错向亚晶界运动, 降低了晶粒内部的位错密度, 而亚晶界中的位错向晶体表面的运动, 导致亚晶界的消失, 形成单晶.

PACC: 6820; 8110F; 6150C

## 一、引 言

晶体表面的微观结构, 如生长台阶、滑移台阶、位错露头 etc 对表面吸附、氧化、催化、晶体生长等有很大影响. 因此, 观察和研究晶体表面的微观结构, 对研究与表面有关的物理现象有很大意义. 尽管扫描电子显微镜已成为观察表面形貌的常用仪器, 但由于分辨率低而限制了其使用范围. 近年来, 反射电子显微术已可用来揭示晶体表面单原子高度的台阶、位错露头点等表面结构, 成为观察表面微观结构的有效方法<sup>[1-3]</sup>. 尽管超高真空是研究表面问题的一个基本条件, 但普通电子显微镜仍可用来观察某些晶体, 如铂、金单晶、某些氧化物单晶的生长表面, 硅、砷化镓等半导体的解理表面<sup>[4]</sup>. 本文用普通电子显微镜观察球状铂单晶表面的微观结构, 从而了解晶体生长中的一些特点.

## 二、实验方法

参照文献 [4] 制备铂单晶的方法, 将直径为 0.3mm 的铂丝在乙炔-氧焰上加热, 使其端部熔化, 形成直径约为 0.5mm 的小球, 这样形成的小球常常是具有 (111) 小面的单晶. 将带有球状单晶的铂丝弯成直径为 3mm 的圆环, 并使球状单晶位于圆环的中心, 将试样安装在 JEM-200CX 电子显微镜的双倾台上, 在 100kV 下进行观察, 观察在球状单晶的小面上进行.

\* 国家自然科学基金资助的课题.

### 三、实验结果与讨论

由上述方法得到的球状单晶常常有  $\{111\}$ ,  $\{100\}$  或  $\{110\}$  小面。其中, 以  $\{111\}$  小面面积最大。我们的观察是在  $\{111\}$  面上进行的。图 1 为用 (666) 反射成像的 (111) 小面上台阶。这些台阶是在晶体生长中形成的。由于电子束是以很小角度掠射过晶体表面, 使反射电子显微像在观察方向上发生较大的收缩, 使小的原子平台或凹坑成了短线段, 图(见图版 I) 中箭头指示了其中一个原子平台。图 1 中有一暗带贯穿于整个小面, 这是小面上的“沟槽”, 沟槽表面仍具有生长台阶。在晶体的这些小面上均可观察到生长台阶, 表明晶体表面的生长台阶是原子迁移的起始点或终止点。

(111) 小面边缘常出现大量不同高度和宽度的台阶, 见图 2 (见图版 I)。小面边缘可看成是邻位面, 从能量的角度来考虑, 邻位面必然是由台阶组成的。从晶体结构上考虑, 构成邻位面的台阶必然有着均匀的分布, 即台阶有相等的高度和宽度, 而常观察到的却是规律性的非均匀分布。图 2 所示的非均匀分布是球状单晶形成时留下来的或是随后的退火中原子迁移造成的, 这还有待于进一步研究。

(111) 小面可以在不同的高度上出现, 形成不同高度的平台。图 3(a), (b) (见图版 I) 指出了不同高度的平台。图 3(c) (见图版 I) 为示意图。当相邻平台高度为原子高度时, 就成了图 1 所示的形貌。而 (110) 小面上的台阶则像一叠发生了位移的圆盘, 而这些圆盘的侧边由  $\{111\}$  小面构成<sup>[5]</sup>, 这与  $\{111\}$  面的表面能较低有关。

图 3(b) 中标出了  $A, B, C, D, E$  等迹线, 它们是晶体中位错滑移留下的。图中  $AA$  平行于  $CC$ , 为同一面指数的滑移面上的位错滑移形成的; 而  $BB, DD, EE$  相互平行, 为另一指数滑移面上的位错滑移形成的。考虑到反射电子显微像的收缩, 对 (111) 面上的滑移迹线分析表明, (111) 面上的滑移迹线在相互成  $60^\circ$  的  $\langle 110 \rangle$  方向上。这与面心立方金属的滑移系统在 (111) 面上留下的迹线相符。如果位错在运动中不发生交滑移, 滑移后在表面形成的台阶为一直线, 迹线  $EE$  就近于这种状态。由于滑移台阶与生长台阶相交, 相交处的原子位于拐角上, 样品一旦退火, 位于拐角处的原子很容易发生迁移, 从而改变台阶的形状。退火时间越长, 台阶形状改变得越明显。从形状的改变程度, 可以了解位错滑移的先后。图 3(b) 中迹线  $AA$  附近台阶形状变化最大, 而  $EE$  最小。因此, 形成  $AA$  迹线的位错最先滑移, 随后是  $BB, CC$  和  $DD$ , 最后才是形成  $EE$  迹线的位错滑移。

图 4(a) (见图版 II) 中  $AA', BB'$  为两滑移迹线方向, 分别终止在  $A, B$  处, 且  $A, B$  处呈现特殊的衬度和一台阶的终止点, 即  $A, B$  处为螺型位错的露头点。另外, 图 4(a) 中箭头还标出了一些由黑白线对组成的特殊衬度, 它们与位错露头点衬度的理论计算结果相一致<sup>[6,7]</sup>。这些位错不是台阶的终止点, 为刃型位错。图 4(a) 中下方箭头所指位错的衬度是非对称性的, 表明位错线不垂直于表面。当小面上的台阶较少时, 刃型位错可以不出现在台阶处, 而图 4(a) 中的刃型位错露头点都在台阶处, 可能说明生长台阶的消长与位错运动有某种联系。图 4(b) (见图版 II) 中  $BB'$  为一小角晶界, 小角晶界中位错的衬度明显地不同于晶粒内部位错的衬度, 这是由于小角晶界中位错密度较高, 位错

应力场相互迭加,从而改变了位错的衬度;另一方面,相邻两亚晶粒存在一取向差,使位错的应力场不同于晶粒内部位错的应力场,也引起位错衬度的改变。图 4(b) 中接近水平方向的线段  $AA'$  为位错滑移形成的台阶。从与  $AA'$  相截的生长台阶在  $AA'$  上、下两边的分布可以看出,  $AA'$  为一原来位于  $A$  处的螺型位错滑移到  $A'$  处时形成的滑移台阶。由于退火的影响,使此滑移台阶在某些生长台阶处不再连续。靠近  $A$  处有一衬度较高的短线段,这是小的原子平台。 $AA'$  是单个螺位错滑移而形成的台阶,其高度为单原子高度,图 4(b) 中大多数生长台阶与它有相近的衬度,也是单原子高度台阶。组成图 4(b) 中小角晶界的位错中,有的为台阶的终止点,而有的位错却与台阶无关,也就是说,有的为螺型位错,有的为刃型位错。因此,此小角晶界为混合型的小角晶界。

从晶体结构上来看,无论是生长台阶还是滑移台阶,只能终止在晶界或位错处,或者形成闭合的曲线(原子平台或凹坑),不能终止在晶粒内部。实验中观察到终止在晶粒内部的台阶状衬度,见图 4(c) (见图版 II)。图中箭头标出了台阶状衬度的终止点,这些终止点不存在位错的衬度分布,不是螺型位错的露头点。这些台阶状衬度与单原子高度台阶的衬度相近,从这些终止点的分布来看,原先可能是一小角晶界,退火中,位错滑移引起小角晶界消失。螺型位错滑移将产生一单原子高度台阶,台阶终止点存在图 4(a) 所示的衬度分布,而上述终止点不存在位错衬度,表明这些台阶状衬度可能是小角晶界中刃型位错滑移留下的痕迹。透射电子显微镜动态原位观察也发现,单个位错滑移后,在样品的上、下表面也留下滑移痕迹<sup>[8]</sup>。是否是由于表面氧化膜的影响,需进一步加以研究。如果位错滑移仅限于一个滑移面上进行,滑移面下的痕迹应为一直线,而图 4(c) 中的滑移痕迹不规则,表明位错发生了多次交滑移。

#### 四、结 语

从液态冷却形成的球状单晶小面上,存在着大量单原子高度的生长台阶、滑移台阶、位错露头点等缺陷。从这些缺陷可以了解球状单晶的形成过程。当熔融的金属小液滴冷却时,晶体内部形成位错、小角晶界等缺陷。在随后的退火过程中,晶粒内部的位错向晶界或表面运动,从而降低了晶粒内部的位错密度。亚晶界中的位错向表面滑移,导致亚晶界的消失,从而形成单晶。位错露头点常常出现在生长台阶处,表明台阶的消长与位错运动存在着某种联系。

- [ 1 ] J. M. Cowley and P. E. Hojund Nielson, *Ultramicroscopy*, **1**(1975), 45.
- [ 2 ] K. Yagi, K. Takayanagi and G. Honjo, in *Crystals, Growth, Properties and Applications*, Springer, Berlin, (1982), p. 47.
- [ 3 ] T. Hsu and J. M. Cowley, *Ultramicroscopy*, **11**(1983), 239.
- [ 4 ] T. Hsu, *Norelco Reporter*, Vol. 31, No. 1EM, (1984).
- [ 5 ] Li Zongquan, Shen Hui, Qin Yong, *Chinese Phys. Lett.*, **7**(1990), 245.
- [ 6 ] H. Shuman, *Ultramicroscopy*, **2**(1977), 361.
- [ 7 ] N. Osakabe, Y. Tanishiro, K. Yagi and G. Honjo, *Surf. Sci.*, **102**(1981), 424.
- [ 8 ] 李永洪等, *金属学报*, **17**(1981), 114.

## OBSERVATIONS OF MICROSTRUCTURES OF CRYSTAL SURFACES BY REFLECTION ELECTRON MICROSCOPY

LI ZONG-QUAN SHEN HUI QIN YONG

*Institute of Solid State Physics, Academia Sinica, Hefei, 230031*

(Received 27 March 1990)

### ABSTRACT

The surface microstructures of spherical Pt single crystals are studied by reflection electron microscopy, and the defect configurations in the crystals are also analysed. Dislocations and low angle grain boundaries appear in the initial stage of the solidification of liquid drops. In the following annealing, the dislocation density decreases and single crystals are formed owing to the movements of dislocations in the grains to the subgrain boundaries, and those in the subgrain boundaries to the surfaces of crystals.

**PACC:** 6820; 8110F; 6150C