

微小晶体生长过程的光学诊断实验研究¹⁾

段 俐 康 琦 束继祖

(中国科学院力学研究所国家微重力实验室, 北京 100080)

摘要 将光学干涉技术与显微技术相结合, 应用计算机技术、图像处理技术发展形成一种实时细观诊断的实验方法——光学细观干涉诊断技术; 实时观测了 KCl 晶体在容积为 $3\text{ mm} \times 3\text{ mm} \times 4.5\text{ mm}$ 的生长池内的结晶过程, 得到了该过程的晶体的表面形貌、生长速率、以及晶体生长尺寸与时间、浓度与时间的定量的关系, 观测到由重力引起的浮力对流现象, 它直接影响晶体的生长. 实验表明重力对晶体生长形态有很大的影响; 生长速率与浓度存在很大的依赖关系.

关键词 浓度场, 传质过程, 晶体生长, 干涉测量

引 言

晶体生长过程是一个热量、质量和动量的输运过程. 该输运过程对晶体生长速率产生限制作用, 同时支配着生长界面的稳定性, 对生长晶体的质量有着极其重要的作用. 在溶液晶体生长过程中, 必然存在变化的浓度场. 在重力的作用下, 溶液浓度变化引起的浮力对流就不可避免. 浮力对流改变了溶液中的浓度场分布, 影响着结晶界面的质量输运, 也直接影响着结晶晶体的质量. 近年来人们已经注意到晶体生长过程中, 环境因素起很大作用, 晶体扩散层浓度、温度等参数直接影响了其生长形态、质量等. 文献 [1,2] 采用光学干涉测量方法对晶体生长进行了观测, 它们均着重于对光学实验技术的研究. 本文试图从流体力学的观点^[3]对晶体生长过程进行了实验研究, 探索晶体生长过程, 分析该过程的流体动力学机理. 晶体生长过程中流体的运动、流体的传热和传质特征与生长晶体的微观结构有密切的关系. 晶体生长过程中诸多物理现象, 均属于细观领域, 研究微小流场的流体运动状态和输运规律, 必须发展与之相应的细观诊断技术. 本文将光测技术与显微技术相结合, 应用计算机技术、图像处理技术等研究发展形成一种细观实时诊断的实验方法——光学细观干涉测量技术.

1 实验原理

两束相干光在空间相遇产生干涉条纹, 干涉条纹记录了其所经过的空间的物理量. 设 $A_1(x, y)$ 和 $A_2(x, y)$ 是传播到平面 $x-y$ 上的两个相同频率相同方向振动的单色光波的复振幅, 由振幅和相位表示成

$$A_i(x, y) = a_i(x, y) \exp[j\phi_i(x, y)] \quad (i = 1, 2)$$

式中 $\phi_i(x, y)$ 取决于光波长 λ 和光程 $L_i(x, y)$, 即

$$\phi_i(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda} L_i(x, y)$$

2000-02-07 收到第一稿, 2001-- 收到修改稿.

1) 中国博士后基金、“攀 A”(95-yu-34) 和国家自然科学基金 (19789201) 资助项目.

两束光叠加后形成的合成强度分布为

$$I(x, y) = |A_1(x, y) + A_2(x, y)|^2 = I_0(x, y) + I_c(x, y) \cos \Delta(x, y)$$

其中

$$I_0(x, y) = a_1^2(x, y) + a_2^2(x, y), \quad I_c(x, y) = 2a_1(x, y)a_2(x, y), \quad \Delta(x, y) = \phi_2(x, y) - \phi_1(x, y)$$

上式表明合成强度由两束光各自的强度和两束光相互作用的强度组成. 这种合成强度偏离两束光各自强度之和的现象即为干涉现象. 在合成的强度中包含两个光波振幅和相位的信息. 通过对该强度的分析可以推导出两光波的相位差, 进而导出两光波的光程差. 在干涉测量中, 就是根据这一基本原理得到所需要的物理量.

2 实验技术

本文采用光学干涉测量手段, 以发展非接触和全场诊断技术为主导, 强调细观物理现象的观测和分析, 提供一个对动态过程的实时观测的实验技术手段. 光学细观干涉测量系统如图 1 所示, 两台激光器分别组成显微 Michelson 干涉测量系统和显微 Mach-Zehnder 干涉测量系统.

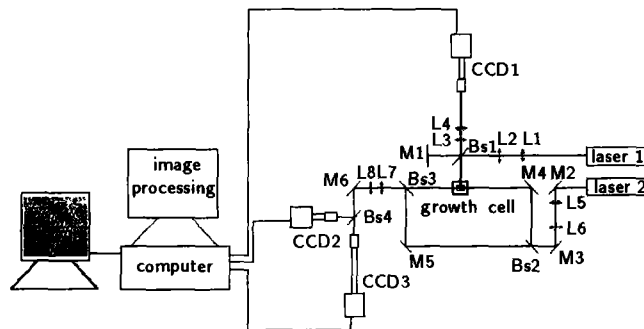


图 1 光学干涉系统

Fig.1 Optics interferometry system

He-Ne 激光器 1, 透镜 L1 和 L2, 分束镜 Bs1, 反射镜 M1 组成 Michelson 干涉系统; 透镜 L3, L4 以及 CCD1 组成显微成像系统. 本套系统的测量目标尺寸约为 $1\text{ mm} \times 0.8\text{ mm}$, 分辨率为 $2\text{ }\mu\text{m}$. 该 Michelson 干涉条纹的信息记录了晶体的表面形貌和生长速率. He-Ne 激光器 2, 反射镜 M2, M3, M4, M5, 分束镜 Bs2, Bs3 和透镜 L5, L6 组成 Mach-Zehnder 干涉系统, 反射镜 M6, 透镜 L7, L8, 及 CCD2 组成全流场成像系统, 观测场尺寸约为 $5\text{ mm} \times 4\text{ mm}$. 以及与 CCD3 组成显微成像系统, 测量尺寸约为 $1.6\text{ mm} \times 2\text{ mm}$, 分辨率为 $2\text{ }\mu\text{m}$. 该 Mach-Zehnder 干涉条纹记录了晶体生长过程中母液的浓度分布及晶体结晶与成核过程. 该仪器中的显微成像系统采用光学镜头与 CCD 成像镜头相结合的设计方案, 实现了长工作距显微成像的目的, 这是本测量诊断系统的关键技术之一. 晶体生长池采用光学玻璃, 由光学加工工艺制作而成. 光学系统的载物台由步进电机控制, 具有 4 维移动调节机构, 它是由计算机控制实现高精度的定位调节.

3 实验及实验结果

分别采用本套光学测量系统中的 Michelson 干涉仪和 Mach-Zehnder 干涉仪观测了 KCl 晶体的结晶过程。

3.1 采用显微 Michelson 干涉测量系统实时观测 KCl 晶体的结晶过程

在温度为 21.0°C 条件下配置 KCl 饱和溶液，取少量溶液注入晶体生长池，放置在测量段处。随着溶液蒸发析出结晶，调整显微 Michelson 干涉测量系统，调节载物台的俯仰，使晶面的反射光全部返回到 CCD1 镜头中，与参考光产生干涉条纹。每隔 12 s 记录干涉条纹图像，共记录 24 帧。该干涉条纹的变化，表明晶体的生长情况。典型的干涉图如图 2 所示，中心区域的条纹变化是晶体表面变形而引起的。图 3 给出图 2 中心区域该生长晶体晶面的表面形貌， x 轴和 y 轴表示所计算的图像位置， z 轴表示各时刻晶体与该实验记录的第一帧图像晶体的相

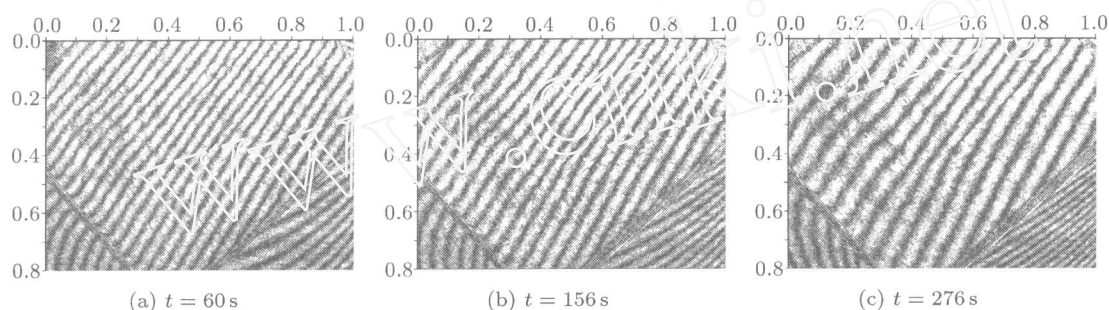


图 2 KCl 晶体结晶时 Michelson 干涉条纹

Fig.2 Michelson interference fringes during the processes of KCl crystal growing

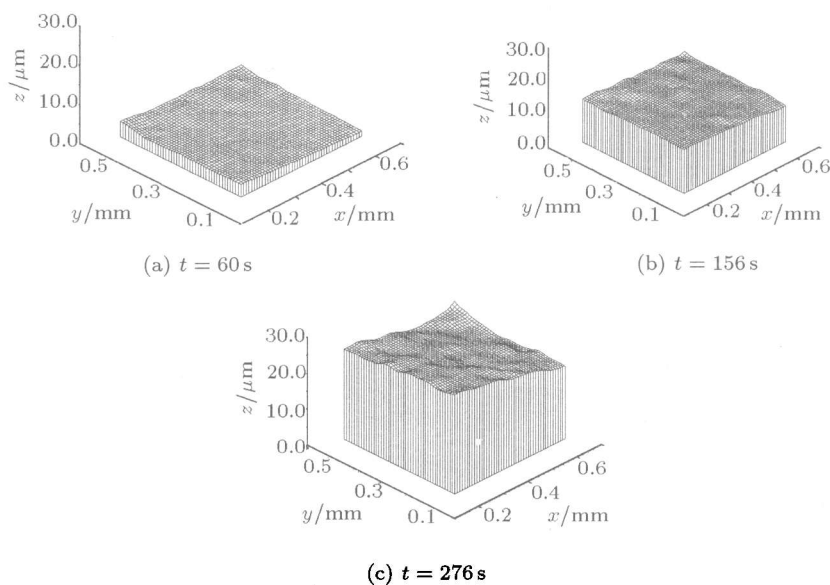


图 3 KCl 晶体结晶时不同时刻的晶面形貌

Fig.3 The surface pattern during the processes of KCl crystal growing

对高度,即相对于第一帧图像晶体的生长高度.根据计算结果得到晶体平均生长速率约为 $9.0 \times 10^{-8} \text{m/s}$.

3.2 采用 Mach-Zehnder 干涉测量系统实时观测 KCl 晶体的结晶过程

将已配置好的 KCl 饱和溶液注入生长池中,降低晶体生长的环境温度,溶液达到过饱和状态, KCl 晶体开始成核生长,实验结果如图 4 和图 5 所示.晶体生长时,溶液中的溶质逐渐吸附到晶体上,靠近晶体表面的溶液浓度较低,在重力场中形成向上运动的液流,即生长涡流,它是由于重力场中浓度变化而产生的浮力对流. Mach-Zehnder 干涉系统观测到的干涉条纹沿晶面向上呈羽毛状,晶体停止生长时,溶液达到另一平衡状态,干涉条纹消失. Mach-Zehnder 干涉条纹直接反映了溶液的浓度梯度,关于浓度的反演计算问题已经在文献 [4,5] 中有详细的讨论.实验证明了在晶体生长过程中,由重力引起的浮力对流现象非常明显,它直接影响着晶体各晶面的生长速率.图 4 和图 5 分别表示晶体生长在液池底部和液面处两种情况.当晶体生长在液池底部时,受重力影响,晶体垂直重力方向的生长速率比平行重力方向的生长速率快(见图 4).当晶体从液面向下生长时,此时靠液面的表面张力的作用使晶体悬浮在溶液中,由于重力作用,晶体平行于重力方向的生长速率比垂直重力方向的生长速率快(参见图 5).根据图 5 实验,绘出晶体生长与时间的关系曲线如图 6 所示,该曲线反映了晶体的生长速率,它在不同方向上的生长速率不同反映了晶体的各向异性. Mach-Zehnder 干涉条纹数与时间的关系曲线如图 7 所示,该曲线反映了晶体生长过程中溶液的浓度梯度与时间的关系.

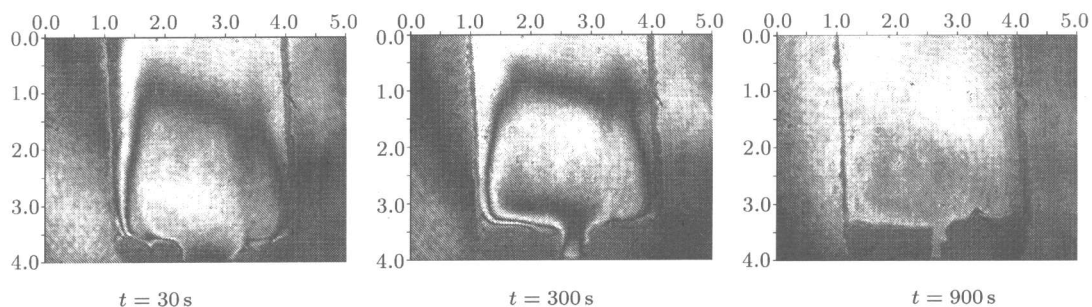


图 4 晶体生长在液池底部时的 Mach-Zehnder 干涉条纹

Fig.4 Mach-Zehnder interferograms when the crystal is growing in the bottom of the cell

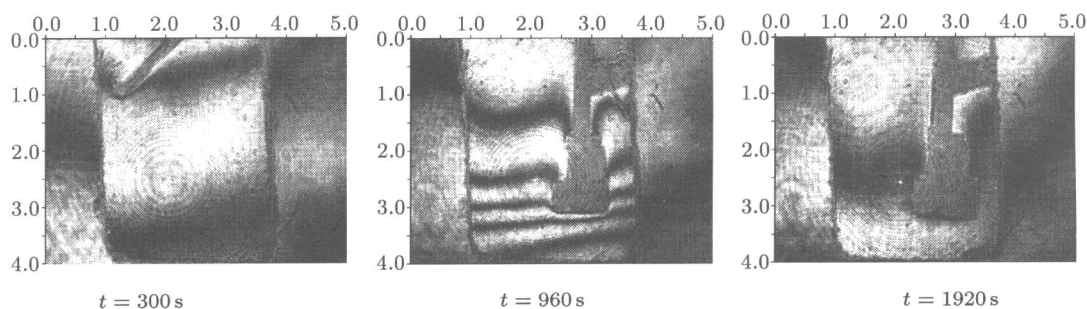


图 5 晶体生长在溶液表面处的 Mach-Zehnder 干涉条纹

Fig.5 Mach-Zehnder interferograms when the crystal is growing from the surface of solution

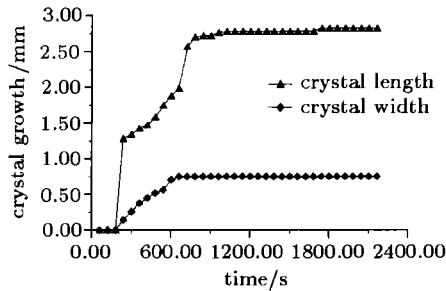


图 6 晶体生长与时间的关系曲线
Fig.6 Crystal growing vs time

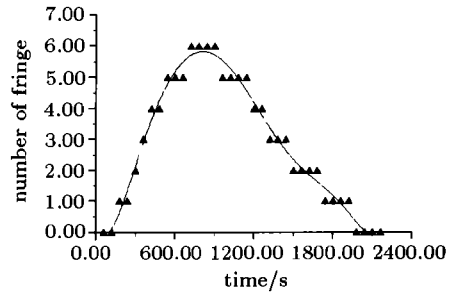


图 7 Mach-Zehnder 干涉条纹数与时间的关系曲线
Fig.7 The number of fringes vs time

4 结 论

本套光学细观干涉测量诊断系统可以实时、无干扰观测微小晶体生长过程的溶液浓度变化和生长速率, 研究晶体生长过程与流体的运动、流体的传热和传质特征与生长晶体的微观结构的密切关系, 为从流体力学的角度研究晶体生长奠定实验基础, 为研究晶体生长机理提供可靠的实验手段. 本文采用显微 Michelson 干涉测量系统和显微 Mach-Zehnder 干涉测量系统实时观测了 KCl 晶体的结晶过程, 观测到重力场中由于浓度的变化引起的浮力对流现象, 得到了晶体生长与时间的关系、溶液浓度梯度与时间的关系, 分析了重力对晶体生长的影响, 这些关系基本符合晶体生长的物理过程.

参 考 文 献

- 1 Kuznetsov Yu G, Malkin AJ, Greenwood A, et al. Michelson interferometric studies of protein and virus crystal growth. *Journal of Crystal Growth*, 1996, 166: 913~918
- 2 Satoru Miyashita, Hiroshi Komatsu, Yoshihisa Suzuki et al. Obseration of the concentration distribution around a growing lysozyme crystal. *Journal of Crystal Growth*, 1994, 141: 419~424
- 3 胡文瑞, 徐硕昌. 微重力流体力学. 北京: 科学出版社, 1999 (Hu Wenrui, Xu Shuochang. Microgravity Fluid Mechanics. Beijing: Science Press, 1999 (in Chinese))
- 4 Duan L, Shu JZ. The convection during NaClO₃ crystal growth observed by the phase shift interferometer. *Journal of Crystal Growth*, 2001, 223: 181~188
- 5 Kang Q, Duan L. Mass transfer process during the NaClO₃ crystal growth process. *International J Heat & Mass Transfer*, 2001, 44: 3213~3222

EXPERIMENTAL STUDY ON THE MINI-CRYSTAL GROWTH BY OPTICAL DIAGNOSTICS¹⁾

Duan Li Kang Qi Shu Jizu

(National Microgravity Laboratory/CAS, Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences,
Beijing 100080, China)

Abstract An optical diagnostic system consisting of the Michelson interferometer and the Mach-Zehnder interferometer with microscope, computer and image processing has been developed for the study of the crystal growing in situ. The experimental setup is at first described in detail. The crystallization process of KCl crystal has been investigated in a growth cell of $3\text{ mm} \times 3\text{ mm} \times 4.5\text{ mm}$. The surface pattern, the growth rate and concentration gradient in the aqueous solution were measured by this diagnostic system. The surface deformation of the growing crystal has been calculated from the Michelson interference fringes according to the calculation method of grating. The growth rate has been determined by the surface deformation at different moment, and the relationship between the growth rate and time has been given in this paper. The concentration change through out the crystalization was visualized by Mach-Zehnder fringes. It proved that the convection (a plume flow) existed in the crystalization. The buoyancy convection due to the gravity has been proved to influence crystal growth directly. These experiments further more demonstrated that the gravity is an important factor in crystal growing, and the growth rate is heavily dependent on the concentration gradient of aqueous solution.

Key words concentration field, mass transfer, crystal growth, interferometry

Received 7 February 2002.

1) The project supported by The Foundation of China Post Doctor, The Ministry of Science and Technology of China(95-yu-34), and the National Natural Science Foundation of China(19789201).