

使用方便可靠等优点,在激光器输出光斑较大或模式不良时也能有较好的注入效率。导光束由许多根纤维一起传输激光功率,其中少数断丝不会对输出功率产生重大影响。在使用了一段时间后断丝增多时,还可以选择断丝较少的部位注入激光继续使用。

导光束已应用于 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ 激光治疗皮肤、口腔部位的血管瘤、淋巴管瘤,获得了显著的效果^[3,4]。医生反映导光纤维束轻便灵活,易于消毒,在五官等部位治疗较导光关节方便。

热熔部位的导光纤维的主要缺点是透过率低,功率损耗大。实践证明它适宜于传输

50瓦以下的激光,而不能用来传输百瓦级的激光。其次,纤维束使激光输出的发散角增大,热熔束的输出激光发散角在 15° 以上,而且输出端中每根纤维是一个发光点,因此完全不能用光学系统聚焦成很细的点。这种纤维束只宜于用作较低功率下的照射、烧灼而不能用作切割、焊接。

参 考 资 料

- [1] E. Snitzer; *Phys. Rev.*, **7**, 444(1961).
- [2] C. Hermas; (*Annals of the New York Academy of Sciences*) Vol. 168, Art. 3.
- [3] 《激光》,1975, **2**, No. 4, 8.
- [4] 东方仪表厂,上海科技报,1976.7.2.

$\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体光学均匀性的改进

中国科学院上海光机所晶体组

用引上法生长的掺杂氧化物晶体,通常都具有核心的缺陷^[1,2]。由于核心中杂质的浓度较高,而引起的化学应力直接影响了材料的光学均匀性。关于核心形成的机理及其消除方法已有人从理论和生长工艺上进行了探讨^[2~4],其中[5,6]对 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ 和 GGG 晶体中核心的研究较为详细。关于 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体中的核心, M. J. Weber^[7] 及 P. Korozk^[8] 等人有一些简单的介绍,至于核心对材料光学均匀性的影响及在生长工艺上的消除都还未见有报导。消除核心对获取大直径光学均匀的 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 激光棒也有一定的实际意义,本文介绍了生长 b 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体的热场条件以及在消除 b 轴、 c 轴晶体中的核心,改善 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体光学均匀性时得到的一些实验结果。

一、实验装置及条件

资料[9]说明只有在一定的热场条件下

生长晶体,才能克服 c 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体的严重开裂及孪晶现象。而 b 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体则可以在图1所示的热场条件下生长。图中曲线表示气液界面处温度梯度为 $\sim 40^\circ\text{C}/\text{毫米}$,在液面以上 25 毫米内温度梯度为

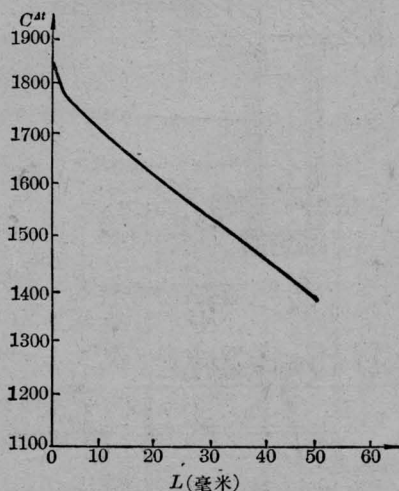


图1 生长 b 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体的炉内温度分布

~10°C/毫米, 超过 25 毫米小于 ~10°C/毫米。在这样的热场条件下生长了不开裂、无孪晶的 b 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体。

图 2 为在石英管炉内生长 b 轴、 c 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体的装置。图 3 为本工作使用的三种形状不同的坩埚。晶体的引上速率为 3 毫米/小时, 晶体的最高转速为 80~90 转/分, 最低转速为 40 转/分。在氩(工业纯)和氮(99.99%)混合气氛中生长晶体, 用 702 温度精密自动控制仪实现温度精密控制, 用品转程序控制仪控制晶体的转速^[17]。

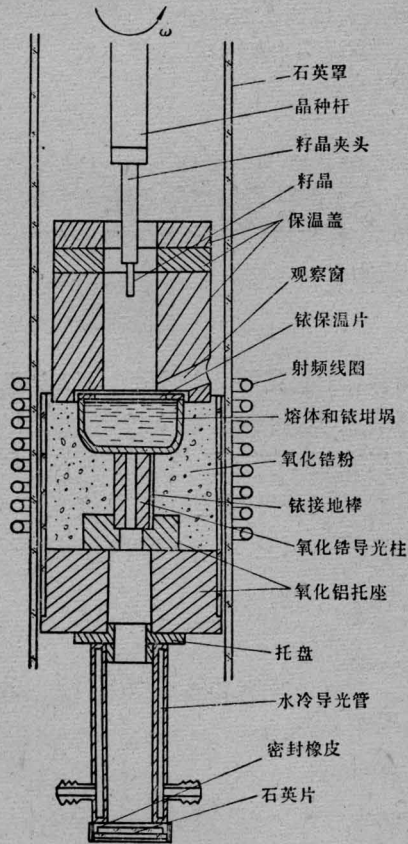


图 2 石英管炉装置

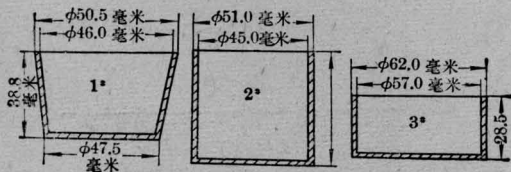


图 3 坩埚形状

二、实验结果与讨论

1. 锥形界面的生长

对以低转速(40 转/分)生长的 b 轴、 c 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体经二端面抛光后可以分别看到贯穿于整根晶体的呈“∞”及“O”形的核心。图 4 是有核心的 b 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体的近场端面图, 图 5 是有核心的 c 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体的近场端面图。图 6、7 分别为有

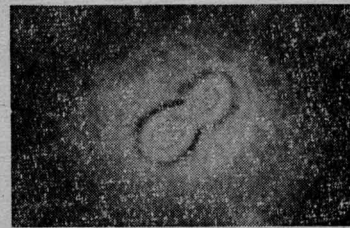


图 4 b 轴晶体中的核心

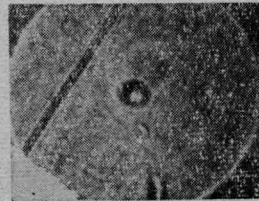


图 5 c 轴晶体中的核心

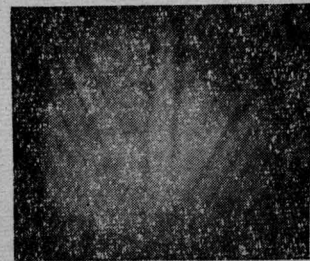


图 6 b 轴晶体的侧面图

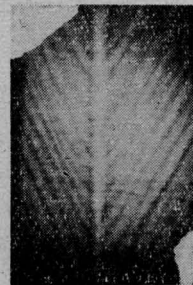


图 7 c 轴晶体的侧面图

核心的 b 轴、 c 轴晶体毛坯二侧面抛光后,以 He-Ne 激光器为光源,经 40 倍放大镜,入射于晶体表面所得的投影。

由图可知,晶体内部形态是呈锥形的不同折射率的连续层次,其形状与晶体生长时固液界面的形状一致,也还可以看到核心侧面是贯穿于整根晶体的“管道。”图 8、9 为含有核心的 b 轴、 c 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体置于沙敏干涉仪后观察到的干涉图。由图可知,核心周围具有相当大的折射率畸变。我们用电子探针测得的 b 轴、 c 轴核心内若干点的 Nd^{3+} 浓度相对值列于表 1,由表中数值可知 b 轴晶体核心内的 Nd^{3+} 浓度比基体中 Nd^{3+} 浓度平均高出 35%; c 轴晶体核心中的 Nd^{3+} 浓度比基体中 Nd^{3+} 浓度平均高出 14%, c 轴晶体中的结果与 P. Korozk 的结果相近。我



图 8 有核心的 b 轴晶体的干涉图

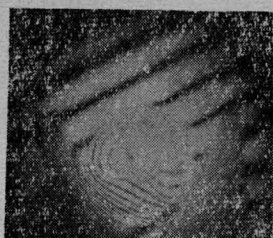


图 9 有核心的 c 轴晶体的干涉图

表 1 核心中不同位置的 Nd^{3+} 浓度对基体的相对值

轴向	位 置							平均
	1	2	3	4	5	6	7	
b 轴	1.20	1.50	1.40	1.40	1.26	1.30	1.40	35%
c 轴	1.10	1.06	1.09	1.17	1.27	—	—	14%

注: 基体中的钕浓度取 1。

们认为这也正好说明图 8 中折射率畸变范围比图 9 中折射率畸变范围大的原因之一。

用倾倒法,当 b 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体的界面形状接近 60 度的锥形时,在锥顶可见有呈镜面对称的 (110) 和 $(\bar{1}10)$ 二个小晶面,如图 10 所示,此小晶面恰与图 4 中的核心相对应;当界面形状接近 55 度的锥形而生长轴与 b 轴的偏差致使 (110) 小面与锥面相切时, (110) 小晶面呈图 11 所示的形状,相对应的核心如图 12 所示,这种核心占有的区域最大,对材料光学均匀性的影响也最大;当界面形状接近 120 度的锥形时, b 轴晶体中的核心呈“O”形,如图 13 所。

由图 14 可知, c 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体中的核心随锥形界面的曲率变小而增大。

因为菱方柱是正交晶系钙钛矿型结晶习

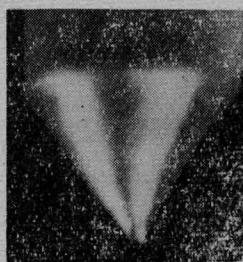


图 10 b 轴晶体锥形界面上呈镜面对称的 (110) 和 $(\bar{1}10)$ 小面

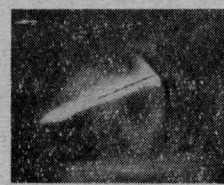


图 11 b 轴晶体锥形界面上的长形小面

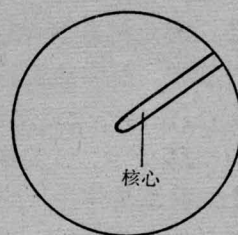


图 12 与长形小面对应的核心



图 13 b 轴晶体 ~ 120 度锥形界面的核心



图 14 c 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体中核心与界面曲率的关系

性之一,其习性面系为 $\{hho\}$, 则 $\{110\}$ 面系可能成为容易显露的晶面。在生长掺杂晶体的非单一晶面的生长界面上,只要具备有与 $\{110\}$ 面系相平行的条件, $\{110\}$ 面系的小晶面就可能显露,在晶体中就会有核心的存在。所以,锥形界面是 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体中存在核心的外界条件。

2. 平坦界面的晶体生长

高频加热引上法中坩埚既是盛料的容器,又是发热体。盛料熔化后,在熔体的径向和纵向都存在着温度梯度,熔体内不可避免地要产生自然对流,其对流形式如图 15 所示。热熔体沿坩埚壁上升至熔体中心受冷下沉,在熔体中形成了循环对流,其对流的强弱与熔体内存在的温差、熔体高度的四次方成正比^[10],与容器的几何形状有关;在晶体生长过程中,晶体的旋转以及熔体的粘滞性,使熔体受迫对流,其对流形式如图 16 所示,热熔体沿熔体中心向上运动至晶体生长的固

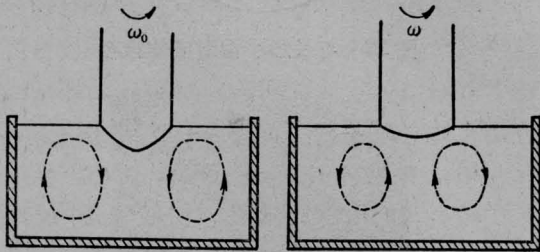


图 15 自然对流的形式

图 16 受迫对流的形式

液界面,填补了受晶体旋转的离心力甩出之熔体。这二种对流各自都能承担熔体内的热量传输和质量传输,界面形状很容易受由它们承担的热量传输的影响。因而,在引上法中可以提高晶体转速,使固液界面以下较热之熔体受晶体旋转的泵动向上运动,从而改变了熔体内的纵向和径向温度梯度^[11],使晶体生长的固液界面附近或整个熔体中的对流以受迫对流为主,固液界面有可能成为平坦。以平坦界面生长的 b 轴或 c 轴晶体不具有小晶面产生的外因,所生长的晶体就没有核心,光学均匀性可以得到提高。图 17、18 分别为以平坦界面生长的 b 轴及 c 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体的内部形态,不见“管道”。图 19、20 分

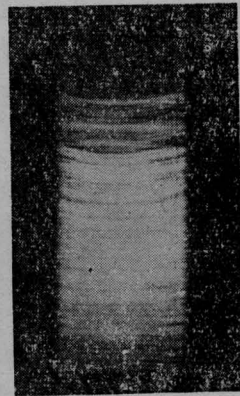


图 17 以平坦界面生长的 b 轴晶体的内部形态

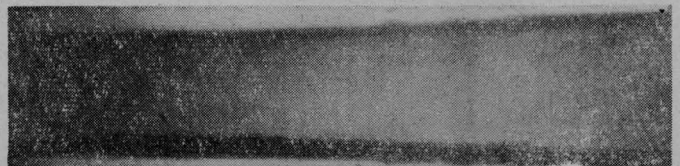


图 18 以平坦界面生长的 c 轴晶体的内部形态



图 19 以平坦界面生长的 b 轴晶体的干涉图

别为平坦界面生长的 b 轴、 c 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体的干涉图, 从图中可以知道光学均匀性得到相当的改善。

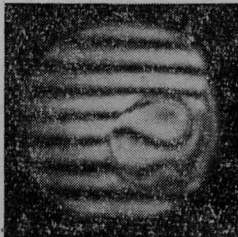


图 20 以平坦界面生长的 c 轴晶体的干涉图

3. “梯形”界面的生长

图 21 是“梯形”生长界面的形貌, 这种界面实际上是一种去顶圆锥形的界面, 简称“梯形”界面。

据 B. Perner^[12] 等人论述, 晶体生长时浸入熔体的体积大小与沿晶体的轴向能量流成正比, 与熔体的能量流成反比。在我们的实验条件下晶体直径为 16~18 毫米, 转速为 55~65 转/分, $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体生长时浸入熔体的体积较大并与 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体本身特性有关。我们认为, 由于浸入熔体的体积较大, 界面附近熔体的受迫对流形成局部径向温度梯度较小的区域, 使生长界面成为去顶的圆锥形, 这种界面形状也反映了熔体中二种对流同时共存, 其界面变化过程多数是渐变的。

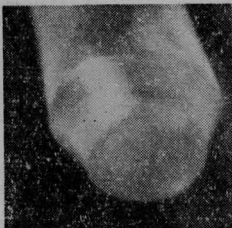


图 21 “梯形”界面

将“梯形”界面生长的晶体毛坯二端抛光后, 在 He-Ne 激光器光源下观察未见有核心及侧心, 但可见到有界面再现的条纹, 如图 22 所示的同心圆。图 23 即是以“梯形”界面生长的晶体的干涉图。从图中可知“梯形”界

面生长的晶体界面容易发生渐变过程, 在晶体中虽无核心及侧心, 但具有界面再现的条纹, 也将影响晶体的光学均匀性。

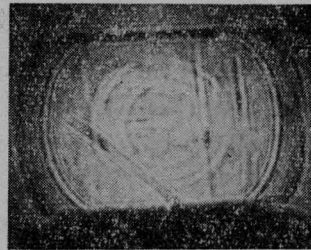


图 22 界面再现条纹



图 23 具有界面再现条纹晶体的干涉图

4. 平坦界面生长工艺的几个问题

(1) 坩埚形状的选择

我们在提高晶体旋转速率试图获得平坦界面的实验中观察到: 晶体生长时, 随着放肩的进行, 生长界面的变化形式有①突变过程; ②渐变过程。图 24 是在 3# 坩埚中生长 c 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体所观察到的界面突变过程。图 17 是在 1# 坩埚中生长 b 轴 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体观察到的界面渐变过程。突变过程与我组^[13]及 G. Zydzik^[14] 生长 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ 及 B. Cockarye^[7]、K. Takagi^[15] 生长 GGG 所观察到的现象相一致。这种界面突变过程是由于晶体旋转使固液界面以下或坩埚下部较热熔体上升而使“老”界面回熔, 平坦界面即从回熔处开始。界面渐变过程在上述诸文中未见有介绍。根据我们的实验观察, 影响界面形状变化形式的因素较复杂。在我们的条件下, 与坩埚形状、自然对流的强弱有关。

图 3 中三种不同形状的坩埚, 它们的直径(d)与高度(h)的比例分别为

$$1^{\#}: \frac{d}{h} = \frac{4}{3}; \quad 2^{\#}: \frac{d}{h} = 1; \quad 3^{\#}: \frac{d}{h} = 2。$$

由于浅型坩埚(3[#])内熔体中径向温度梯度相对小,在放肩阶段晶体旋转引起的熔体受迫对流又较易接近坩埚底部,而在较深坩埚(2[#])中熔体内径向温度梯度相对大,晶体旋转引起的受迫对流又较不易接近坩埚底部。因此,在3[#]坩埚中,熔体的受迫对流能将接近坩埚底部温度较高的熔体泵动传输至晶体生长时的固液界面,造成“老”界面的回熔,致使界面发生突变。在相对深的坩埚中,晶体旋转引起的受迫对流,不易将接近坩埚底部温度较高的熔体直接泵动传输至界面造成晶体的回熔,而只是达到熔体内径向温度梯度逐渐减小,使界面形状有渐变的过程。

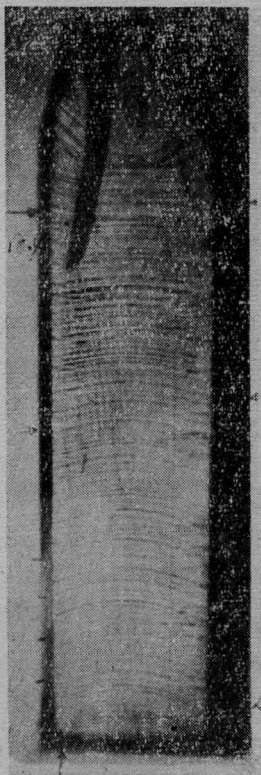


图24 界面突变过程

实验证明界面突变的现象往往伴随着晶体直径发生比较明显的收缩,实验中我们即以晶体直径的突变作为晶体开始以平坦界面生长的信号。因此,生长平坦界面晶体时,选

用浅型坩埚有利于掌握晶体生长界面变化的情况,便于控制。

(2) 晶体变形

我们用2[#]坩埚以较高转速(最高转速为88转/分,最低转速为73转/分)生长了平坦界面的c轴Nd³⁺:YAP晶体。但是,随着晶体生长,晶体的外形由圆柱形逐渐成扁形,如图25所示的端面外形,还时常出现扭变。扁形的c轴Nd³⁺:YAP晶体(生长界面已是平坦或微凹形)消除了c轴Nd³⁺:YAP晶体中常见的“O”形核心,但晶体内折射率畸变仍相当大,使晶体的光学均匀性受到严重破坏。晶体变形的原因之一是YAP晶体的各向异性,在熔体中径向温度梯度小到某临界值时,各晶面以各自的生长速率自由地生长,生长速率慢的晶面得到显露。我们在实验中选用浅型坩埚(3[#]),使晶体在相对低的转速下(与扁晶体相当的直径)生长,避免达到使晶体各向异性得以显露的径向的温度梯度,使晶体仍以圆柱状生长,保证了晶体的光学均匀性。

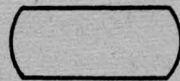


图25 扁形晶体的端面外形

我们认为对一些各向异性的晶体或某些以各向异性方向生长的等轴晶体,为获取平坦界面生长的晶体而又要避免晶体的急剧变形及扭变,选用浅型坩埚,以相对低的转速生长可能是一些可取的工艺因素。

(3) 晶体直径与转速

晶体生长时,由于晶体的旋转,熔体中以受迫对流为主形式的确立,是受迫对流与自然对流抗衡结果的继续。当熔体中的径向温度梯度与纵向温度梯度小于某一临界值时,标志着固液界面附近或整个熔体中开始以受迫对流为主地传输热量。临界值的获得与所生长晶体的转速及其相关的直径有明显的关系,在同一转速下往往由于晶体直径有4%

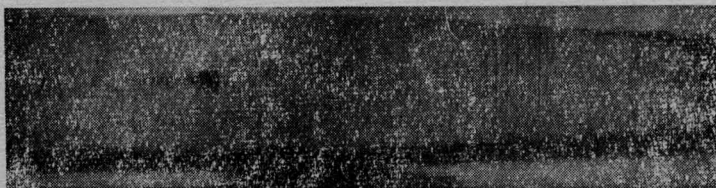


图 26 平坦界面生长的 A₇₇₀₃ c 轴 Nd³⁺:YAP 晶体

的增加而使熔体中的温度达到临界值^[14]。D. S. Robertson^[16] 和 B. Cockayne^[7] 分别以模拟实验及生长 GGG 晶体得到了受迫对流发生时转速与直径的关系。我们在 3[#] 坩埚中的实例为 A₇₇₀₃; 晶体直径为 18.4 毫米, 转速为 51 转/分; A₇₇₀₇ 晶体直径为 13.6 毫米, 转速为 80 转/分。

随着晶体生长, 熔体的高度逐渐下降, 熔体内的温度梯度也逐渐变小, 自然对流的强度逐渐减弱。所以, 在晶体生长工艺上必须随着晶体的生长逐渐降低转速才能始终维持晶体生长界面平坦或微凹, 否则晶体生长界面将由平坦变成严重的凹形, 使晶体内产生组分过冷的缺陷及气泡。而降转速程序的确定则完全是经验性的。图 26 所示的晶体即是以图 27 所示的降转速程序生长的。

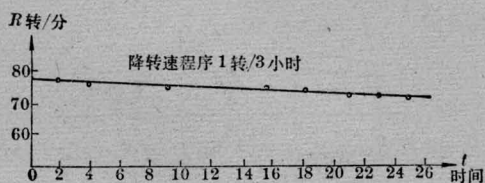


图 27 A₇₇₂₃ 晶体的转速程序

三、结 束 语

我们在生长 c 轴取向的 Nd³⁺:YAP 晶体后, 在较大的温度梯度下生长了不开裂、无孪晶的 b 轴取向的 Nd³⁺:YAP 晶体。

在较低转速下生长的 b 轴、c 轴取向的 Nd³⁺:YAP 晶体都有核心的缺陷, 适当提高晶体转速, 使晶体生长界面成平坦或微凹形能消除核心。

在实验中观察到 Nd³⁺:YAP 晶体生长

时界面形状的变化过程有二种形式、(1)突变过程; (2)渐变过程。影响界面形状变化过程的因素比较复杂, 在我们的实验条件下, 界面形状的变化过程与所用坩埚的形状及坩埚中熔体自然对流的强弱有关。

选用浅型坩埚并给以经验性的晶体直径与降转速程序, 已生长出无核心、光学均匀的 c 轴 Nd³⁺:YAP 晶体。

参 考 资 料

- [1] 南京大学物理系晶体物理教研室, 《晶体生长的理论基础(下册)》。
- [2] B. Cockayne et al.; *J. Crystal. Growth*, 1968, **3/4**, 60~70.
- [3] William R. Wilcock; *J. Crystal. Growth*, 1970, **7**, 203~208.
- [4] A. A. Chernov; *Ann. Rev. Materi. Sci.*, 1973, **3**, 397.
- [5] 武居文彦等; 《东芝レビュー》, 1969, No. 12, 1507~1515.
- [6] B. Cockayne et al.; *J. Materi. Sci.*, 1975, **11**, No. 2, 255.
- [7] M. J. Weber; 未发表。
- [8] P. Korozk, C. B. Staff; *J. Crystal. Growth*, 1973, **20**, No. 1, 31.
- [9] 上海光机所晶体组; 《激光》, 1974, **1**, No. 1.
- [10] K. M. Kiss et al.; *J. Electrochem. Soc.*, 1972, **119**, No. 9, 1218.
- [11] 激光晶体编写组; 《激光晶体》, 上海人民出版社出版, 86.
- [12] B. Perner et al.; *Czech. J. Phys.*, 1974, **B24**, No. 10, 1091~1096.
- [13] 上海光机所三室晶体组; 《感应加热引上法中坩埚内熔体对流状态对 Nd³⁺:YAG 晶体的影响》。
- [14] G. Zydzik; *Material. Res. Bull.*, 1975, **10**, 701~708.
- [15] K. Takagi et al.; *J. Crystal. Growth.*, 1976, **32**, 89~94.
- [16] D. S. Robertson; *Briti. JAP*, 1966, **17**, 1074.
- [17] 上海光机所十二室自控组; 《拉晶转速的程控与测量》。见本期第 30 页