

文章编号: 0258-7025(2003)05-0435-06

Nd:YAG 晶体生长过程中 Nd^{3+} 浓度场的数值模拟

苏伟^{1,2}, 钟景昌², 张丽波³, 岑学员⁴, 李林², 赵英杰²

长春理工大学¹ 计算机科学与技术学院, ² 高功率半导体激光国家重点实验室, 吉林 长春 130022
(³ 中国第一汽车集团公司技术中心, 吉林 长春 130011; ⁴ 广州市半导体材料研究所光电子材料中心, 广东 广州 510610)

摘要 采用有限差分法(FDM)对使用 Cz(Czochralski)法生长 Nd:YAG 激光晶体过程中熔体内和晶体内 Nd^{3+} 浓度场进行数值模拟研究。首先给出了 Nd:YAG 晶体生长系统的数学模型, 然后对上述数学模型进行无量纲化处理, 最后给出相应的边界条件, 使用有限差分法求解上述方程。应用上述方法编制仿真程序, 仿真了改变工艺条件后熔体内和晶体内 Nd^{3+} 浓度场的变化情况, 分析了各种工艺条件对上述场量变化的影响。

关键词 人工晶体; 晶体生长; 有限差分法; 数值模拟; 浓度场

中图分类号 O 782+.5 **文献标识码** A

Numerical Simulation Study on Field of Nd^{3+} Concentration during the Growth of Nd:YAG Crystal

SU Wei^{1,2}, ZHONG Jing-chang², ZHANG Li-bo³,
CEN Xue-yuan⁴, LI Lin², ZHAO Ying-jie²

¹College of Computer Science and Technology, ²National Key Lab of High-Power Semiconductor Lasers, Changchun University of Science and Technology, Changchun, Jilin 130022, China
³R&D Center of China FAW Group Corporation, Changchun, Jilin 130011, China
⁴Center of Optoelectronic Materials, Guangzhou Institute of Semiconductor Materials, Guangzhou, Guangdong 510610, China

Abstract A numerical simulation study on the field of Nd^{3+} concentration in the melt and the crystal by using FDM (finite differential method) during the growth of Nd:YAG crystal by Cz (Czochralski) method was reported. At first, the mathematical model of the growth of Nd:YAG crystal was given, then the equations with no dimensions were given. Finally, the boundary condition was given and the equations were solved by FDM. The simulation program was given by above method, and then the change of the field of the Nd^{3+} concentration in the melt and the crystal was described by simulation program. The effect of processing conditions on the above field in the melt was analyzed.

Key words synthetic crystal; crystal growth; finite differential method (FDM); numerical simulation; field of concentration

1 引言

近年来,晶体生长理论研究的技术和手段有了很大的发展,其中最重要的是基于现代计算机技术

发展而产生的数学建模和数值模拟及晶体生长过程的实时观察^[1]。随着计算机技术的高速发展,数值模拟研究法已经成为了解和改进熔体生长技术的重要工具,它被成功地用于对实验研究的指导和补充。

收稿日期:2002-10-09; 收到修改稿日期:2002-12-11

作者简介: 苏伟(1967—),男,长春理工大学计算机科学与技术学院计算机系副教授,在职博士,主要研究方向为光电子材料和器件及其数值模拟和计算机仿真技术、人工智能技术。E-mail:suwci@public.cc.jl.cn

数值模拟可以用较少的费用和较短的时间得出有实际意义的较全面的信息,从而更快、更好地认识各种现象对晶体生长过程的影响,为在晶体生长实验中寻求最佳工艺条件提供参考。

在结合近年来研究成果的基础上,我们通过建立模型、模型变换和模型实验三个阶段对 Nd:YAG 晶体生长进行了数值模拟研究,在数值模拟过程中充分考虑了晶体转速、拉速等对 Nd:YAG 晶体生长的影响,详细准确地描述用 Cz(Czochralski)方法生长 Nd:YAG 晶体过程中熔体内和晶体内 Nd^{3+} 浓度场,并对数值模拟实验结果进行了分析,从而为在晶体生长实验中寻求最佳工艺条件提供参考。

到目前为止,对晶体生长的数值模拟研究已有三十余年的历史。近年来,这方面的研究较为活跃,并取得了一系列的研究成果。X. Geng 等在 Cz 法晶体生长过程中,用体积有限差分法(FDM),采用真实参数的数学模型对熔体的混合流进行了仿真^[2];C. Shu 等用全局的广义微积分方法仿真 Cz 法晶体生长系统中的液流^[3];Koichi Kakimoto 等对非稳定状态时熔体液流进行了详细的数值模拟^[4];W. E. Langlois 采用实际的几何参数和物理参数,数值模拟了半导体晶体在坩锅中生长的过程中随时间变化的流动^[5];Yasunori Okano 等通过有限元法对 Cz 法生长氧化物单晶的固熔界面和熔气界面进行了数值研究,讨论了晶体旋转速率、自然对流力对熔体流动类型的影响^[6];George H. Gilmer 描述了在不同情况下,用蒙特卡罗法计算晶体生长速率,其中包括自动附加原子的二维成核、螺旋生长、带小圆柱孔的晶体的生长与气化,含杂质的晶体的生长和面心立方体的三个晶面的生长^[7];刘永才等开发了一种基于边界保角变换技术的有限元方法来研究熔体法石榴石晶体生长过程的界面动力学,并建立了一个可导致界面上小面形成的动力学模型,该模型可处理界面上粗糙面区域和光滑面区域共存的复杂情况^[8]。

尽管晶体生长仿真研究已有了很大进展,但由于晶体生长技术和方法的多样性和生长过程的复杂性,目前晶体生长理论研究与晶体生长实践仍有相当的距离,人们对晶体生长过程的理解有待进一步的深化。

2 Nd:YAG 晶体生长的数学模型

本系统的数学模型采用流体力学方程的向量形

式^[9]。

熔体动量方程

$$\rho \left(\frac{\partial v}{\partial t} + v \cdot \nabla v \right) = -\nabla P + \mu \nabla^2 v + \rho g [1 - \beta_t(T - T_0) + \beta_c(C - C_0)] e_z \quad (1)$$

熔体连续性方程

$$\nabla \cdot v = 0 \quad (2)$$

熔体热传输方程

$$\frac{\partial T}{\partial t} + v \cdot \nabla T = a_m \nabla^2 T \quad (3)$$

熔体质传输方程

$$\frac{\partial C}{\partial t} + v \cdot \nabla C = D \nabla^2 C \quad (4)$$

晶体热传输方程

$$\frac{\partial T}{\partial t} + V_t \cdot \nabla T = a_s \nabla^2 T \quad (5)$$

坩埚热传输方程

$$\frac{\partial T}{\partial t} = a_c \nabla^2 T \quad (6)$$

其中各方程的物理意义及其各参数的取值参见参考文献^[10]。

3 仿真模型的建立与分析

3.1 数学模型无量纲化

为了体现数学模型中的不同项(对流项、粘性项、压力项等)的影响,需要将式(1)~(6)进行无量纲化处理,得到:

熔体动量方程

$$\begin{aligned} V \cdot \nabla V = & \\ -\nabla P + \frac{1}{R_e} \nabla^2 V - \frac{1}{R_e^2} (G_n \Theta - G_{rc} C) e_z + & \\ \left\{ \frac{1}{F} - \frac{rcw \times g}{(rs \times \tilde{w}s)^2} [\beta_t (T_c - T_0) + \beta_c C_0] \right\} e_z & \end{aligned} \quad (7)$$

熔体连续性方程

$$\nabla \cdot V = 0 \quad (8)$$

熔体热传输方程

$$P_c V \cdot \nabla \Theta = \nabla^2 \Theta \quad (9)$$

熔体质传输方程

$$P_{cc} V \cdot \nabla C = \nabla^2 C \quad (10)$$

晶体热传输方程

$$P_{cs} e_z \cdot \nabla \Theta = \nabla^2 \Theta \quad (11)$$

坩埚热传输方程

$$\nabla^2 \Theta = 0 \quad (12)$$

(7)~(12)式中的无量纲参数及其意义见文献^[10]。

3.2 方程离散化

这里所研究的是与时间无关的椭圆型方程,椭圆方程的这一特性规定了其离散方程的代数求解基本方法,即由于求解区域的各点值是相互影响的,因而各个代数方程必须联立求解。将微分方程中的每一项均用相应差商来代替,就能写出该微分方程在每一网格点的变量 ξ 的差分解 Φ ,不过正因为截断误差和其他形式的误差的存在,求出的差分解 Φ 并非 ξ 的真实解,而是它的近似值。在所研究的微分方程组中,采用哪种差分格式视需要而定,通常向前差分收敛性好,但其精度低,而中心差分精度比较高,但其收敛性差一些。在本工作中对方程的离散采用了前差分格式。

4 仿真实验结果分析

4.1 仿真实验及其初始条件

为了求得各种工艺条件下熔体内 Nd^{3+} 的分布,编制了仿真程序,进行了仿真实验。实验中仿真了各种不同工艺条件下熔体内 Nd^{3+} 浓度场的变化情况,并绘制了 Nd^{3+} 浓度场的剖面图。通过对剖面图的分析,讨论了改变各种工艺参数对晶体生长过程中 Nd^{3+} 浓度场变化的影响,以及对晶体质量的影响。

在绘图时,采用了矩阵坐标,横轴 (i 轴) 表示坩埚径向网格点数,纵轴 (j 轴) 表示坩埚轴向网格点数,网格点数是根据其无量纲长度取得的。网格径向点数 m , 网络轴向点数 n 作为输入参数,由用户在程序运行时给出,其参考值均为 80,据此可计算出对应的无量纲网格间距

$$\text{径向无量纲网格间距 } dr =$$

$$\frac{\text{坩埚外径的无量纲长度 } wrcw}{\text{网格径向点数 } m}$$

$$\text{轴向无量纲网格间距 } dz =$$

$$\frac{(\text{坩埚厚} + \text{熔体深}) \text{的无量纲长度}}{\text{网格轴向点数 } n}$$

在仿真程序运行过程中,网格径向、轴向无量纲网格间距保持不变,即网格径向点数始终不变,而网格轴向点数随仿真时间而变化。图中所标注的数值表示无量纲浓度。各工艺参数的初值选取如下:晶体转速初值为 $\omega_s = 16 \text{ r/min}$,晶体拉速初值为 $v_t = 0.66 \text{ mm/h}$,晶体直径 $r_s = 0.06 \text{ m}$,坩埚直径为 0.12 m ,熔体的初始深度为 0.11 m , Nd^{3+} 的初始浓度为 $5.5 \text{ at.}\%$,晶体顶部分温度为 1870 K ,坩埚中线温度为 2270 K ,坩埚底角温度为 2300 K 。在仿真

过程中,晶体转速和晶体拉速是逐渐下降的。图 1 为仿真时间 3 天 ($t_{\text{time}} = 3$) 时,熔体内 Nd^{3+} 浓度场的剖面图。下面,我们结合数值实验结果对影响晶体生长的因素进行分析。

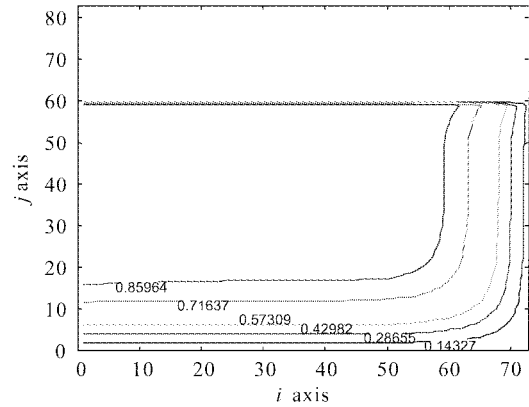


图 1 $t_{\text{time}} = 3$ 时的浓度场

Fig. 1 Filed of Nd^{3+} concentration in the melt while $t_{\text{time}} = 3$

4.2 晶体拉速的影响

晶体拉速在一定程度上决定着晶体的生长速度。现改变晶体拉速的初值,其余参数不变,重新计算熔体内 Nd^{3+} 的浓度场,用来分析晶体拉速对其影响。将晶体拉速初值由 0.66 mm/h 增加至 0.75 mm/h ,晶体拉速随仿真时间变化的规律见表 1。在这种情况下,当 $t_{\text{time}} = 6$ 时,熔体内 Nd^{3+} 浓度场如图 2 所示。

表 1 $v_t = 0.75 \text{ mm/h}$ 时晶体拉速随仿真时间的变化

Table 1 The change of the crystal pulling speed with the simulating time while $v_t = 0.75 \text{ mm/h}$

Simulation time /day	1	2	3	4	5	6
Pulling speed of crystal	0.75	0.75	0.6	0.6	0.45	0.45

当晶体拉速初值升至 0.75 mm/h 时,晶体生长速度加快,熔体深度相对较小,等浓度线密集于坩埚底部,表明固液界面处 Nd^{3+} 的浓度高,所形成的晶体中的 Nd^{3+} 的浓度也随之增加。熔体固液界面处径向 Nd^{3+} 的分布以及晶体中轴向 Nd^{3+} 的分布如图 3,4 所示,图中的虚线是晶体初始拉速为 0.75 mm/h 时的数值实验结果,其晶体拉速随仿真时间变化的规律见表 1;实线是晶体初始拉速为 0.66 mm/h 时的数值实验结果,其晶体拉速随仿真时间变化的规律见表 2;点划线是晶体初始拉速为 0.5 mm/h 时的数值实验结果,其晶体拉速随仿真时间变化的

规律见表 3。由图中可以看出:随着晶体拉速的加大,熔体固液界面处 Nd^{3+} 的径向分布均匀性提高了,但固液界面处 Nd^{3+} 的浓度也随之提高。

表 2 $v_t = 0.66 \text{ mm/h}$ 时晶体拉速随仿真时间的变化

Table 2 The change of the crystal pulling speed with the simulating time while $v_t = 0.66 \text{ mm/h}$

Simulation time /day	1	2	3	4	5	6
Pulling speed of crystal	0.66	0.66	0.5	0.5	0.45	0.45

表 3 $v_t = 0.5 \text{ mm/h}$ 时晶体拉速随仿真时间的变化

Table 3 The change of the crystal pulling speed with the simulating time while $v_t = 0.5 \text{ mm/h}$

Simulation time /day	1	2	3	4	5	6
Pulling speed of crystal	0.5	0.5	0.45	0.45	0.4	0.4

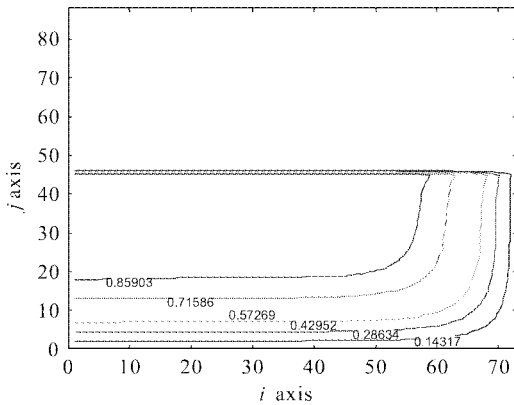


图 2 $t_{\text{time}} = 6, v_t = 0.75 \text{ mm/h}$ 时的浓度场

Fig. 2 Filed of Nd^{3+} concentration in the melt while $t_{\text{time}} = 6$ and $v_t = 0.75 \text{ mm/h}$

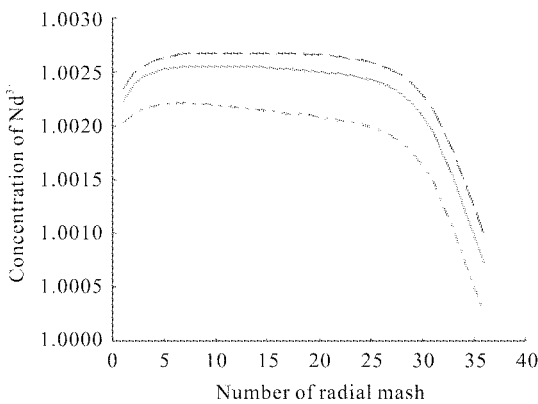


图 3 熔体固液界面处 Nd^{3+} 的浓度分布图

Fig. 3 Nd^{3+} concentration distribution diagram at interface between the solid and the melt

(The solid line stand for $v_t = 0.66 \text{ mm/h}$; The dash line stand for $v_t = 0.75 \text{ mm/h}$; The dash-dot line stand for $v_t = 0.5 \text{ mm/h}$)

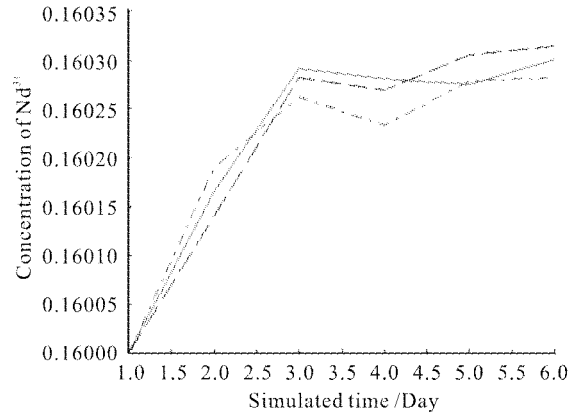


图 4 晶体中沿生长轴方向 Nd^{3+} 的浓度分布图

Fig. 4 Nd^{3+} concentration distribution diagram in crystal along the growth axis

(The solid line stand for $v_t = 0.66 \text{ mm/h}$; The dash line stand for $v_t = 0.75 \text{ mm/h}$; The dash-dot line stand for $v_t = 0.5 \text{ mm/h}$)

4.3 晶体直径的影响

在以前的讨论中,晶体直径均为 0.06 m ,现改变晶体直径,其余参数不变 ($\omega_s = 16 \text{ r/min}$, $v_t = 0.66 \text{ mm/h}$),分析晶体直径对熔体中 Nd^{3+} 浓度的影响。将晶体直径增加至 0.08 m ,当 $t_{\text{time}} = 6$ 时,熔体中 Nd^{3+} 浓度如图 5 所示。熔体固液界面处径向 Nd^{3+} 的分布以及晶体中轴向 Nd^{3+} 的分布如图 6,7 所示,图中的虚线是晶体直径为 0.08 m 时的数值实验结果;实线是晶体直径为 0.06 m 时的数值实验结果,点划线是晶体直径为 0.04 m 时的数值实验结果。由图中可以看出:增大晶体直径,可以降低固液界面处 Nd^{3+} 的浓度,也可以降低晶体中 Nd^{3+} 的浓度,但同时降低了熔体固液界面处 Nd^{3+} 的径向分布均匀性。

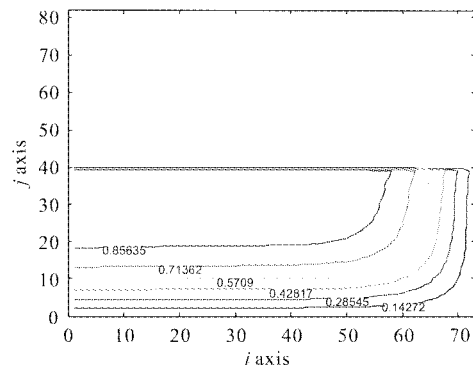
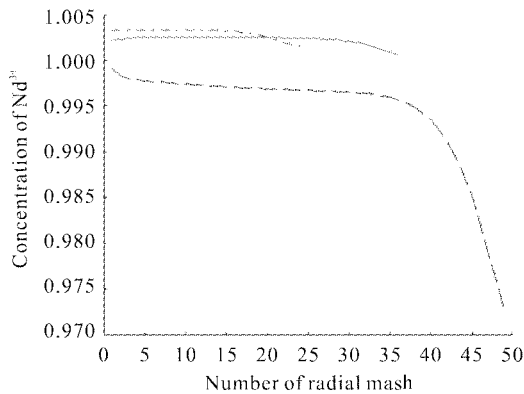
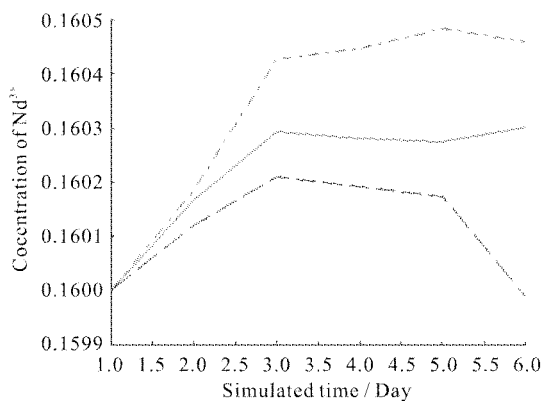


图 5 $t_{\text{time}} = 6, r_s = 0.08 \text{ m}$ 时的浓度场

Fig. 5 Filed of Nd^{3+} concentration in the melt while $t_{\text{time}} = 6$ and $r_s = 0.08 \text{ m}$

图 6 熔体固液界面处 Nd^{3+} 的浓度分布图Fig. 6 Nd^{3+} concentration distribution diagram in crystal at interface between the solid and the melt

(The solid line stand for $r_s = 0.06$ m; The dash line stand for $r_s = 0.08$ m; The dash-dot line stand for $r_s = 0.04$ m)

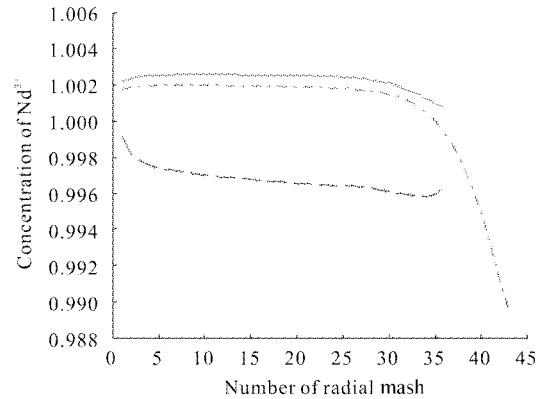
图 7 晶体中沿生长轴方向 Nd^{3+} 的浓度分布图Fig. 7 Nd^{3+} concentration distribution diagram in crystal along the growth axis

(The solid line stand for $r_s = 0.06$ m; The dash line stand for $r_s = 0.08$ m; The dash-dot line stand for $r_s = 0.04$ m)

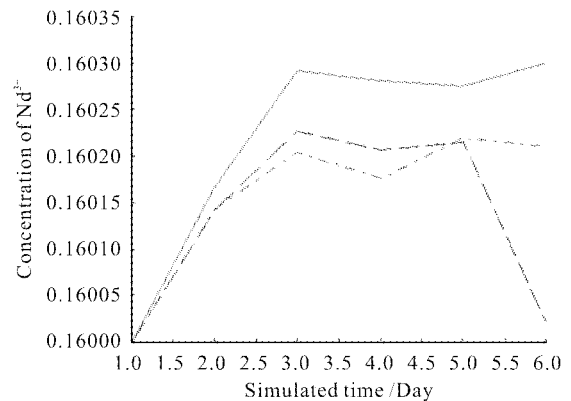
4.4 坩埚尺寸的影响

在以前的讨论中,坩埚直径为 0.12 m,坩埚的深度也为 0.12 m,即坩埚的径深比为 1,熔体的初始深度略低于坩埚深度取为 0.11 m。现改变坩埚的径深比,其余参数不变 ($\omega_s = 16$ r/min, $v_t = 0.66$ mm/h, $r_s = 0.06$ m),以分析坩埚尺寸对熔体固液界面处径向 Nd^{3+} 的分布以及晶体中轴向 Nd^{3+} 的分布的影响。熔体固液界面处径向 Nd^{3+} 的分布以及晶体中轴向 Nd^{3+} 的分布如图 8,9 所示,图中的虚线是径深比为 6:5 时的数值实验结果;实线是径深比为 1 时的实验结果,点划线是径深比为 5:6 时的数值实验结果。由图可以看出,增大坩埚的径深比,可以显著降低固液界面处 Nd^{3+} 的浓度;减小坩埚的

深比,也可以降低固液界面处 Nd^{3+} 的浓度,但效果不显著,且降低了熔体固液界面处 Nd^{3+} 的径向分布均匀性。

图 8 熔体固液界面处 Nd^{3+} 的浓度分布图Fig. 8 Nd^{3+} concentration distribution diagram in crystal at interface between the solid and the melt

(The solid line stand for $d_i : d_c = 1$; The dash line stand for $d_i : d_c = 6 : 5$; The dash-dot line stand for $d_i : d_c = 5 : 6$, d_i stand for diameter of the crucible, and d_c stand for depth of the crucible)

图 9 晶体中沿生长轴方向 Nd^{3+} 的浓度分布图Fig. 9 Nd^{3+} concentration distribution diagram in crystal along the growth axis

(The solid line stand for $d_i : d_c = 1$; The dash line stand for $d_i : d_c = 6 : 5$; The dash-dot line stand for $d_i : d_c = 5 : 6$)

致谢 本工作得到长春理工大学材料化工学院博士生导师刘景和教授和东北光电技术研究所洪冬梅高级工程师的大力支持和帮助,特此致谢。

参 考 文 献

- 1 Zheng Yanqing, Shi Erwei, Li Wenjun *et al.*. Research and development of the theories of crystal growth [J]. *Journal of Inorganic Materials* (无机材料学报), 1999, 14(3):321~332 (in Chinese)

- 2 X. Geng, X. B. Wu, Z. Y. Guo. Numerical simulation of combined flow in Czochralski crystal growth [J]. *Journal of Crystal Growth*, 1997, **179**(1-2):309~319
- 3 C. Shu, Y. T. Chew, Y. Liu. An efficient approach for numerical simulation of flows in Czochralski crystal growth [J]. *Journal of Crystal Growth*, 1997, **181**(4):427~436
- 4 Koichi Kakimoto, Hiroyuki Ozoe. Heat and mass transfer during crystal growth [J]. *Computer Materials Science*, 1998, **10**:127~133
- 5 W. E. Langlois. Digital simulation of Czochralski bulk flow in a parameter range appropriate for liquid semiconductors [J]. *Journal of Crystal Growth*, 1977, **42**:386~399
- 6 Yasunori Okano, Tsuguo Fukuda. Numerical study on Czochralski growth of oxide single crystals [J]. *Journal of Crystal Growth*, 1991, **109**:94~98
- 7 George H. Gilmer. Computer simulation of crystal growth [J]. *Journal of Crystal Growth*, 1977, **42**:3~10
- 8 Liu Yongcai, Simon Brandon. Interfacial kinetic model for directional growth of garnets [J]. *Journal of Synthetic Crystals* (人工晶体学报), 1999, **28**(1):8~16 (in Chinese)
- 9 Min Naiben. The Physical Foundation of Crystal Growth [M]. Shanghai: Shanghai Press of Science and Technology, 1982, Chapter 3. 80~133 (in Chinese)
- 10 Su Wei, Zhong Jingchang, Zhang Libo *et al.*. Numerical simulation study on field of temperature during the growth of Nd:YAG crystal [J]. *Chinese J. Lasers* (中国激光), 2003, **30**(4):334~340 (in Chinese)

全固态和频 589 nm Nd:YAG 激光器*

钠原子谱线激光光源不仅在光谱学研究中有广泛的应用,而且在军事应用方面(如空间目标监测与识别)有着重要应用。半导体抽运的固体激光器产生钠黄光具有效率高、体积小、光束质量好等优点,美、德、法、英等国开展了大量的研究,而我国尚未开展全固态钠信标光源研究。本实验组采用双棒串接热致双折射补偿谐振腔设计及临界相位匹配的 KTP 腔内和频方案,获得了大于 500 mW 589 nm 的激光输出。

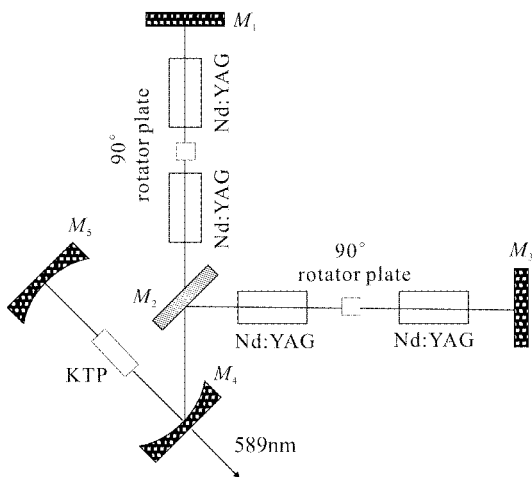


图 1 Nd:YAG 和频 589 nm 激光器光路图
Fig. 1 Scheme of 589 nm laser with sum-frequency Nd:YAG

实验装置如图 1 所示。谐振腔采用双棒串接复合折叠腔腔内倍频配置。激光头为侧面抽运的 Nd:YAG, 半导体激光器从三向对称抽运, 每个激光头所用阵列最大输出功率

180 W; Nd:YAG 棒长 75 mm, 直径 3 mm, 掺杂浓度 1%。两个激光头之间加 90° 旋光片用来补偿热致双折射。谐振腔采用复合折叠腔结构, 反射镜 M_1 和 M_5 为平面镜, M_4, M_5 是曲率半径为 190 mm 的平凹镜。为实现连续波和频, KTP 晶体放置于 M_4, M_5 之间的束腰处, 折叠臂和频光腰半径设计为 100 μm 左右。根据最大抽运时激光晶体中的热透镜大小, 腔设计时使抽运最大时模体积上升, 因此在没有用光阑限模的情况下, 不损失激光功率, 而获得较好的模式。

采用 KTP II 类临界相位匹配复合腔腔内和频 ($\theta = 79.2^\circ, \phi = 0^\circ$, 晶体尺寸 3 mm \times 4 mm \times 10 mm)。KTP 晶体 1064 nm 与 1319 nm 和频参数如下:

$$1319.0(e) + 1064.0(o) = 588.9(o)$$

走离角/mrad	18.93	0.00	0.00
相位匹配角 (θ, ϕ)/deg	79.2	0.0	
有效非线性系数/pm/V	-3.43E0		
容忍角/mrad \cdot cm	3.83		
温度范围/K \cdot cm	27.30		
接收角/mrad \cdot cm	3.83		

实验中获得 589 nm 最大输出功率 510 mW。由于激光腔镜损伤, 未能获得更高功率输出。目前正在进行优化谐振腔设计, 提高镜片膜系损伤阈值, 拟进一步提高输出功率, 预计输出功率将超过 5 W。

中国科学院物理研究所, 北京 100080
毕 勇, 孙志培, 张 瑛, 张鸿博,
李瑞宁, 崔大复, 许祖彦

收稿日期: 2003-03-26

* 国家 863 计划重大项目资助(2002AA731052)。