

文章编号: 0258-7025(2006)Supplement-0313-03

自动控径平界面生长大尺寸 Nd:GGG 晶体

王永国^{1,2,3}, 莫小刚², 徐学珍^{1,2,3}, 舒俊^{1,2,3}, 桂尤喜^{1,2,3}, 朱建慧^{1,2,3}

¹ 军用固体激光技术国防科技重点实验室, 北京 100015
² 北京雷生强式科技有限责任公司, 北京 100015
³ 中国电子科技集团公司第十一研究所, 北京 100015

摘要 用于固体热容激光器(SSHCL)技术的掺钕钆石榴石(Nd:GGG)晶体要求有较大的尺寸和较高的光学质量, 平界面生长是获得大尺寸和高质量 Nd:GGG 晶体的主要途径。采用自动控制晶体直径的单晶炉和平界面生长技术生长大尺寸 Nd:GGG 晶体, 获得了直径 $\phi 75$ mm, 等径长 60 mm 以上无散射颗粒、光学均匀性好的 Nd:GGG 晶体。

关键词 材料; Nd:GGG 晶体; 提拉法; 自动控径; 平界面

中图分类号 O782⁺.5, O734 **文献标识码** A

Growth of Large-Sized Nd:GGG Crystal with Automatic Control of Diameter and Flat Interface

WANG Yong-guo^{1,2,3}, MO Xiao-gang², XU Xue-zhen^{1,2,3}, SHU Jun^{1,2,3},
GUI You-xi^{1,2,3}, ZHU Jian-hui^{1,2,3}

¹ Key Lab of Solid-State Laser Technology for National Defence, Beijing 100015, China
² Beijing Opto-Electronics Technology Co., Ltd., Beijing 100015, China
³ No. 11th Institute of China Electronics Technology Corporation, Beijing 100015, China

Abstract Nd:GGG crystal with large size and good optical quality is required to applied for solid-state heat capacity laser (SSHCL), and the major way to obtain the crystals is to grow with flat interface by the method of Czochralski. In this paper large-sized Nd:GGG crystal of 75 mm diameter and 60 mm length is successfully grown by the flat interface growth technique in the furnace equipped with automatic diameter control appliance. And the crystal is absent of scattering particles and shows good optical homogeneity.

Key words materials; Nd:GGG crystal; Czochralski method; automatic diameter control; flat interface

1 引 言

Nd:GGG 晶体与 Nd:YAG 晶体相比, 较容易实现平界面生长(没有核心, 位错密度低)而得到大尺寸高光学质量晶体。Nd³⁺ 离子在 GGG 中具有更好的晶格均匀性而能实现较高浓度掺杂, 荧光浓度猝灭效应小^[1,2]。同时又具有较高的力学强度和热导率(热导率比 Nd:YAG 小 1.4 倍), 因此 Nd:GGG 晶体成为研制高能激光武器系统固体热容激光器(SSHCL)的重要材料。

2 晶体生长

2.1 平界面生长的技术难点

对于提拉法晶体生长而言, 生长界面(固液界面)

形状主要有三种类型: 凸界面, 即晶体生长的固液界面凸向熔体内; 平界面, 即晶体生长的固液界面基本为平面; 凹界面, 即晶体生长的固液界面凹向晶体内。这三种类型界面中, 凸界面生长稳定性较好, 当晶体直径和生长速率受外界影响发生轻微变化时, 界面形状不会发生本质变化, 较容易生长出无散射光学均匀性好的晶体, 但其缺点为生长的晶体特别是石榴石系列晶体有核心和侧心。核心和侧心位置由于光学均匀性差, 不能作为激光元件使用, 使激光元件的尺寸受到很大限制。平界面生长的晶体没有核心和侧心, 同样尺寸的晶坯可选的激光元件尺寸大。但平界面生长是一种临界状态, 当晶体直径、晶体旋转速率、温度、温度梯度等相关生长条件发生变化时, 平界面生

基金项目: 固体激光技术国防科技重点实验室基金(51438090104ZS0801)资助课题。

作者简介: 王永国(1965—), 男, 研究员级高工, 主要从事激光材料方面的研究。E-mail: wangyongguo@oet.com.cn

长就会发生变化,变成凸界面或凹界面生长,界面形状一旦发生变化,将使晶体质量变坏,尤其是出现凹界面生长时,晶体散射严重,质量差。

用于高能固体热容激光器的 Nd:GGG 晶体,要求较大的直径,因此必须采用平界面工艺生长。如上所述,平界面生长工艺最重要的是保持界面在等径生长过程中始终为平面。但晶体在实际生长过程中,始终保持稳定的平界面生长有很大的难度。实验中,由于晶体直径与坩埚直径之比较大,液面下降速度快;同时为了使熔体中 Ga_2O_3 挥发尽可能少,采用较快的生长速度也使液面下降加快,而随着液面的下降,温度场也必然发生变化;再者 Nd:GGG 晶体较易开裂,必须采用较小温度梯度的温度场,这使得温度场体系受外界干扰的影响较大。所有这些都对实现稳定的平界面生长非常不利。

除以上平界面生长的难点外,Nd:GGG 晶体在生长过程中容易开裂,解决大直径晶体开裂问题是必须突破的技术难关。控制好晶体的外形和采用温度均匀的温度场生长晶体可解决此问题。高温下氧化镓比氧化钷挥发量大,因此 Nd:GGG 晶体生长过程中,极易造成熔体组分偏离,导致晶体结构不完整等缺陷。采用 GGG 相原料、封闭温度场及含氧气氛生长晶体可有效抑制组份挥发。Nd:GGG 晶体极易发生“螺旋生长”,一旦发生“螺旋生长”,晶体直径无法控制,导致生长失败。要使晶体不发生螺旋生长,必须在对称性好的温度场下生长晶体,籽晶要精确定向,原料组分要合适,固液界面处的温度梯度也要合适。

2.2 实现稳定平界面生长的技术措施

根据流体动力学方程运动量纲分析得出的界面翻转临界条件为

$$d \geq d_c = [g\beta_T \Delta T r_c^3 \pi^{-2}]^{1/4} \omega^{-1/2},$$

其中 d 为晶体直径, d_c 为界面翻转临界直径, g 为重力加速度, β_T 为熔体体膨胀系数, ΔT 为固液界面与坩埚壁之间的径向温度差, r_c 为坩埚内径, π 为圆周率, ω 为晶体转动角速度。从(1)式可知,在所要生长的晶体直径 d_c 和坩埚直径 r_c 确定的条件下,温度梯度(ΔT)、实际生长晶体的直径及晶体转速是影响平界面稳定生长的主要因素。根据以上分析,采用温度梯度合理的温度场:在保证提供较大的结晶驱动力,维持较快的生长速率的同时,既不造成晶体开裂,又能随着液面的下降,使温度梯度的变化较小。采用变转速生长工艺:在提拉法生长过程中,当熔体液面下降造成温度梯度减小后,熔体自然对流减弱,

必须将转速降低以减小强迫对流,使强迫对流和自然对流保持相对平衡,从而保持平界面晶体的稳定生长。精确控制晶体的直径尺寸,在等径生长阶段,保持晶体直径不变化,有助于保持强迫对流的强度稳定,以保持平界面生长的条件,使界面形状不发生变化。

2.3 晶体自动等径控制原理及优点

采用上称重自动等径控制技术生长晶体,在温度场合适、生长参量和控制参量设定合理的条件下,可从下籽晶至晶体生长结束实现全过程自动生长。控制原理为:

控制器输出(或称响应)为:

$$U = U_0 + dU,$$

式中 U 为当前加热电压, U_0 为上一时刻加热电压, dU 为加热电压的变化量,

$$dU = K_P \times \Delta d + K_D \times (\Delta d - \Delta d_0) / \Delta T +$$

$$K_I \times \int_{t_0}^{t_1} \Delta d dt,$$

式中 K_P, K_D, K_I 分别为比例系数、微分系数和积分系数, Δd_0 为上一时刻直径偏差, Δd 为当前时刻直径偏差, ΔT 为控制启动的时间间隔, t_0 为控制启动的时间, t_1 为当前时间。

从上式可知,当电子称上重量增加时,单位时间内增加的重量换算成晶体直径,与预设的晶体直径进行比较,形成 $\Delta d, \Delta d > 0$ 时(晶体直径比预设直径大),从上式可算出 dU 为正,加热功率增大,抑制晶体直径变大。这个过程每分钟进行一次,从而使晶体按预设的外形生长。在实际生长中, K_P, K_D, K_I 参量值的设定非常重要,它决定所生长的晶体外形与设定外形的偏差,如果 K_P, K_I, K_D 参量设定不当,可使晶体生长不能正常进行。

因为自动等径控制的时间间隔仅为一分钟,在这样短的时间内晶体直径不会发生明显变化,基本上在晶体生长界面将要发生变化时就得到了控制,可保持晶体生长的界面稳定,对平界面晶体生长非常有利。

3 实验结果

根据以上分析,特别设计制作了多层加盖的上屏蔽温度场结构,以营造合适的温度梯度,晶体生长参量采用变转速,等径阶段晶体生长速度约为 2 mm/h,转速在等径开始时为 12 r/m,结束时为 11 r/m,转速随等径长度增加均匀减小。采用上称

重自动直径控制单晶炉生长晶体,晶体直径进行自动控制。在实际生长中,当 K_p, K_D, K_I 参量决定的控制灵敏度较高时,晶体直径周期性偏离预设直径,但晶体平均直径与预设直径一致。适当降低控制器的控制灵敏度,晶体直径周期性偏离预设直径的情况会减轻。当发生组份挥发较严重时,容易出现“螺旋生长”现象,当温度梯度较小时也容易出现“螺旋生长”现象。经过多次参量调整和生长试验,成功生长出了直径达 75 mm 的高质量平界面 Nd:GGG 晶体,且晶体生长工艺重复性良好。图 1 为 $\phi 75 \text{ mm} \times 60 \text{ mm}$ 的 Nd:GGG 晶坯外形照片。

采用自动控径平界面生长的 Nd:GGG 晶体经加工后,用应力仪和干涉仪测量,无核心、无侧心,应力均匀,光学质量良好。

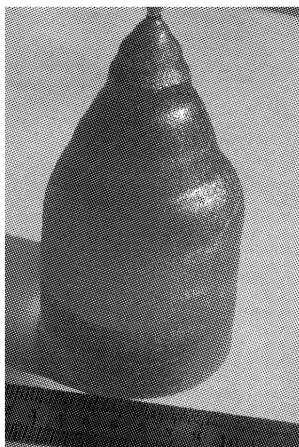


图 1 $\phi 75 \text{ mm} \times 60 \text{ mm}$ 的 Nd:GGG 晶坯外形照片

Fig. 1 Photograph for $\phi 75 \text{ mm} \times 60 \text{ mm}$ Nd:GGG boule

图 2 是用直径 $\phi 75 \text{ mm}$ 平界面晶坯加工出的用于固体热容激光器工作介质的激光元件($\phi 70 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$)的外形照片。

$\phi 70 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ 激光元件干涉条纹 ≤ 0.25 条/25 mm,消光比 ≥ 25 dB,无散射颗粒。

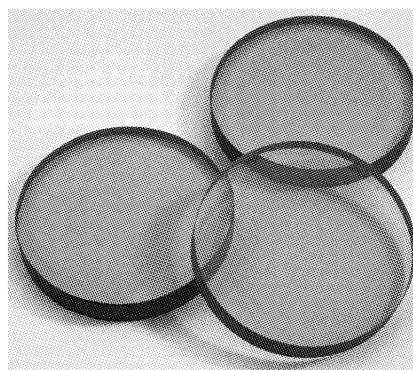


图 2 Nd:GGG 激光元件($\phi 70 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$)外形照片

Fig. 2 Photograph for $\phi 70 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ Nd:GGG laser crystal element

4 结 论

通过对影响大尺寸高质量 Nd:GGG 晶体生长因素的分析,认为关键因素有温度场条件、生长参量、组分挥发、生长界面形状等,在前三种因素得到较好解决的前提下,控制好晶体稳定的平界面生长极为重要。通过采用自动直径控制技术及设备生长晶体,设计制作合适的温度场装置,有效地控制了晶体的直径,获得了质量优良的直径 $\phi 75 \text{ mm}$,等径长 60 mm 的 Nd:GGG 晶体。

参 考 文 献

- 1 M. E. Doroshenko, V. V. Osiko, V. B. Sigachev *et al.*. Large single crystals of neodymium and chromium co-doped gadolinium gallium garnet for efficient solid state lasers [C]. *SPIE*, 1992, **1839**: 12~29
- 2 B. Keszei, J. Paitz, J. Vandlik *et al.*. Control of Nd and Cr concentrations in Nd, Cr:Gd₃Ga₅O₁₂ single crystals grown by Czochralski method [J]. *J. Crystal Growth*, 2001, **226**(1): 95~100
- 3 Y. Fei, M. M. C. Chou, B. H. T. Chai. Crystal growth and morphology of substituted gadolinium gallium garnet [J]. *J. Crystal Growth*, 2002, **240**(1~2): 185~189
- 4 C. D. Brandle, A. J. Valentino. Czochralski growth of rare earth gallium garnets [J]. *J. Crystal Growth*, 1972, **12**(1): 3~8