

Yb:YAG 晶体的生长缺陷及位错走向

杨培志¹, 邓佩珍², 殷之文¹, 田玉莲³

(1. 中国科学院无机功能材料开放实验室, 中国科学院上海硅酸盐研究所, 上海 200050; 2. 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800; 3. 中国科学院北京高能物理所国家同步辐射实验室, 北京 100039)

摘要: 用同步辐射透射白光形貌相和应力双折射法研究了沿 $\langle 111 \rangle$ 方向生长的 Yb:YAG 晶体的生长缺陷、晶体中的位错起源和走向。Yb:YAG 晶体中的生长缺陷主要有: 生长条纹、核心和位错等。晶体中的位错主要起源于籽晶、杂质粒子以及生长初期的晶种和固液界面处位错成核。位错的走向垂直于生长界面, 符合能量最低原理。采用凸界面生长工艺可以有效的消除晶体中的位错。

关键词: Yb:YAG 晶体; 生长缺陷; 同步辐射形貌相; 应力双折射; 位错走向

中图分类号: O77

文献标识码: A

文章编号: 1000-985X(2000)04-0399-05

Study on Growth Defects and Dislocation Propagation in Yb:YAG

YANG Pei-zhi¹, DENG Pei-zhen², YIN Zhi-wen¹, TIAN Yu-lian³(1. Laboratory of Functional Inorganic Materials Shanghai Institute of Ceramics Chinese Academy of Sciences Shanghai 200050, China;
2. Shanghai Institute of Optics and Fine mechanics Chinese Academy of Sciences Shanghai 201800, China;
3. Beijing Synchrotron Radiation Laboratory, Institute of High Energy Physics Chinese Academy of Sciences Beijing 100039 China)

(Received 28 May 2000 accepted 6 July 2000)

Abstract: We have performed the study of defects in Yb:YAG crystal grown by CZ method by means of transmission synchrotron topography and optical birefringence topography. The generation and propagation of dislocations in $\langle 111 \rangle$ oriented CZ-grown Yb:YAG crystals have been investigated. The dislocations observed in as-grown crystals lie on the (110) planes mainly originated from three sources: (1) dislocations continued from those already present in seed; (2) dislocations nucleated at the seed-crystal interfaces; (3) dislocations originating from impurity ions and inclusions. The dislocations usually propagate along a path perpendicular to the growth interface. Therefore, in crystals grown with a convex solid-liquid interface, the dislocations will be decreased or eliminated.

Key words: Yb:YAG crystal; growth defects; synchrotron radiation topography; birefringence; dislocation propagation

1 引言

90年代以来, 随着 InGaAs 激光二极管(发射波长为 0.9~1.1 μm)的发展, 新型的掺 Yb³⁺

收稿日期: 2000-05-28; 修订日期: 2000-07-06

基金项目: 国家自然科学基金(69578026); 国家高技术 863-416-2 资助项目

作者简介: 杨培志(1966-), 男, 白族, 云南省人, 中国科学院上海硅酸盐研究所博士后。

激光材料引起了人们的浓厚兴趣,各种掺 Yb^{3+} 基质材料的研究风起云涌^[1-3]。可以预见:在不久的将来,掺 Yb^{3+} 激光材料必将成为固体激光领域内的一颗璀璨的明珠。在掺 Yb^{3+} 激光材料中, $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体由于具有优异的热力学性能和机械性能、良好的光学和光谱特性、化学稳定性好、可进行较高浓度掺杂等特点而成为目前广泛研究,最具发展潜力的激光晶体之一^[3],可用作高效、高功率固体激光增益介质。

对 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体的光谱和激光特性,目前已进行了较全面系统的研究^[4-6],但对其生长缺陷的研究,未见有关报道。众所周知,激光材料中的缺陷研究是非常重要的,缺陷对激光材料的光学均匀性、光损耗、激光输出功率和效率、光束质量以及光损伤均有影响,晶体中位错密度的增加将会引起明显的应力双折射效应,并进而影响晶体的激光性能。因此, $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体的缺陷研究是十分必要的,结合生长工艺的缺陷研究将有利于改进和完善晶体生长工艺,提高晶体质量,改善晶体的激光性能。

本文用同步辐射透射白光形貌相和应力双折射法研究了用提拉法沿 $\langle 111 \rangle$ 方向生长的 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体中的生长缺陷、位错起源和走向。

2 实验

实验用的 Yb^{3+} 原子分数含量为 20% 的 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体是用 Czochralski 方法沿 $\langle 111 \rangle$ 方向生长^[7],观察晶体应力的样品为垂直于生长方向的 (111) 面,厚度为 5mm,两面抛光。

同步辐射透射白光形貌相所用样品则依据晶体的衍射理论,当 $\mu t \leq 1$ 时 (μ 为质量吸收系数, t 为样品厚度),形貌图上的位错是以强度增高的形式出现,当 $\mu t = 1$ 时,用不同靶材照相对 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体的厚度有不同的要求。按 $A_{gK\alpha}$ 线波长进行计算,样品需加工成 $80 \sim 90 \mu\text{m}$,由于同步辐射透射形貌照相采用的光源为白光,实验中样品的厚度可放宽至 $120 \sim 150 \mu\text{m}$ 左右。所用样品分别沿平行于生长轴 $\langle 111 \rangle$ 方向和垂直于生长轴 $\langle 110 \rangle$ 方向切割,经过机械研磨及抛光到厚度为 $200 \sim 250 \mu\text{m}$ 左右,然后在 320°C 、85% 浓磷酸溶液中进行化学抛光以除去晶体表面应力层并使其减薄到 $120 \sim 150 \mu\text{m}$ 。同步辐射白光形貌相在中科院北京高能物理所同步辐射国家实验室进行,实验布置为透射老厄几何的 Guinier-Tennevin 法,底片到样品的距离为 10cm,曝光时间为 $5 \sim 30\text{s}$ 。

3 实验结果及讨论

图 1 为正交偏光显微镜下观察的 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体 (111) 面的应力照片。其中图 1a 是未退火的 (111) 面的应力图, b 图为经过 1600°C 、氧气氛退火后 (111) 面的应力图。图中的亮视场相应

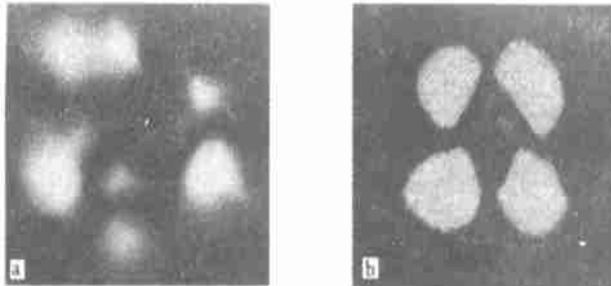


Fig. 1 Stress-birefringence of 20at. % $\text{Yb}:\text{YAG}$ in a section perpendicular to $[111]$

于晶体的应力区。通常,晶体中存在下列应力:

(1)晶体生长过程中温度梯度造成的热应力。

(2)结构应力。主要包括晶体不完整性,如位错造成的应力,杂质、包裹物和组分偏析,使晶格常数发生变化和由填隙原子所造成的应力等,它们分布于缺陷和杂质周围。

(3)小晶面造成的应力。由于小晶面的中央距离等温面最远而过冷度最大,因此小晶面处容易产生掺杂离子和其它杂质的富集。

对 Yb³⁺YAG 晶体而言,应力主要包括热应力、结构应力和小晶面引起的应力。由于 YAG 晶体的 Burgers 矢量大,位错引起的应力较大。晶体中的应力是各向异性的。通过退火工艺可以消除热应力和减小结构应力。而小晶面应力无法通过退火消除。由图 1 可见退火前晶体的应力区较大,应力分布比较散乱,退火后晶体的应力区减小,且比较规则 and 对称,呈“四叶花瓣”状。这说明高温、氧气氛退火减少和消除了晶体中的一些缺陷,尤其是消除了由 Yb²⁺ 所致的大量点缺陷。从而使晶体的光学均匀性和结构完整性有显著提高。

图 2 为沿<111>方向生长的 Yb³⁺YAG 晶体的纵切片(110)面的一组同步辐射透射白光形貌相(121 反射)。从中可看到生长条纹,它们代表了晶体的生长历史和固液界面的变化情况,这些条纹主要是由于生长条件的波动引起生长率的变化而形成的。同时,生长条纹区的强应力场又会诱导杂质粒子的沉积。由图可见:生长条纹大致分为两类,一类衬度较深,条纹较粗,这类条纹可能是由熔体对流引起;较细的条纹可能是晶体转动或温度起伏的宏观反映。这些生长条纹还显示出温场中热中心的偏离程度,在靠近温场中心处,条纹间距宽,离开温场中心较远处条纹渐渐变密。晶体经过高温氧气氛退火并不能消除生长条纹。由图 2 还可见:在晶体上部(放肩阶段)存在包裹物和朝向晶体边缘的位错线束。这些位错线束是由籽晶、杂质粒子和生长初期在生长界面处位错成核所引起的。在晶体的等径部分,这些位错线束消失。

图 2 表明, Yb³⁺YAG 晶体中位错的增殖主要取决于固液界面的形状,位错的走向总是垂直于固液界面。这一现象符合能量最低原理:当位错沿垂直于固液界面传输时所需走的路程最短,以致处于能量最低状态,因而比较稳定。邓佩珍教授^[8]在 Nd³⁺YAG 晶体中发现了这一规律;Schmidt^[9]也在 GGG 晶体中发现了类似规律,并用 Klapper 理论^[10]计算了位错传输路程。

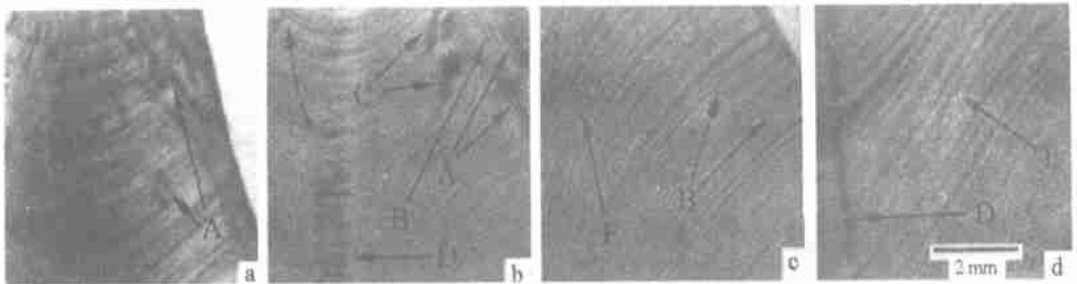


Fig. 2 The synchrotron radiation topography of (110) slices of 20at. % Yb³⁺YAG parallel to [111] growth axis with (121) reflection.

(a)→(b)→(c)→(d): from the upper parts to the middle of the crystal

A: dislocation bundles originated from seed-crystal interfaces; B: dislocation lines; C: dislocation bundles originating from impurity or inclusions D: core and side core; E: growth striation

在生长初期,从形貌相上观察到较多的位错线束,这表明晶体的位错密度较大;在接近等径部分,仅在晶体的边缘观察到位错线;在等径部分,未见位错线束,说明位错密度较低,甚至无位错。这与化学腐蚀和位错走向规律得到的结果一致。在所生长的 Yb^{3+} 原子分数含量为 20% 的 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体中,平均位错密度低于 $10^2/\text{cm}^2$,在晶体的上部位错密度较大,而在晶体等径部分的中间段和内核区域近乎零位错。这说明生长的 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体具有高度的晶格完整性。从离子半径匹配的角度看,由于 Yb^{3+} 离子在八配位时的有效离子半径为 0.0985nm , Y^{3+} 的离子半径为 0.1019nm , Nd^{3+} 的离子半径为 0.1109nm 。 Yb^{3+} 与 Y^{3+} 两者更为匹配, Yb^{3+} 在 YAG 中将具有更大的分凝系数,因此, $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体中的位错密度要比 $\text{Nd}:\text{YAG}$ 低。

图 3 是 Yb^{3+} 原子分数含量为 20% 的 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体同一部位横切片(111)面在退火前后的

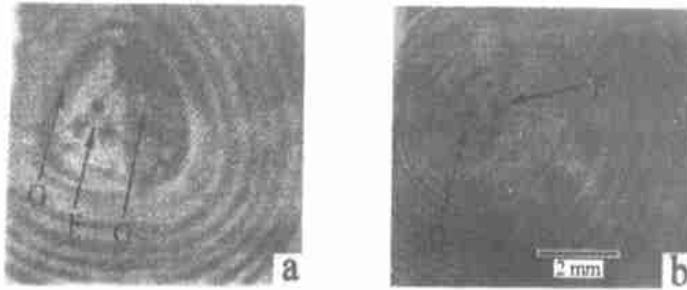


Fig. 3 The synchrotron radiation topography of (111) slices of 20 at. % $\text{Yb}:\text{YAG}$ perpendicular to [111] growth axis with (210) reflection. (a) — as-grown crystal; (b) — annealed crystal at $1600\text{ }^\circ\text{C}$ for 36 h; core; G; side core

同步辐射透射白光形貌相(210 反射)。由图可见:晶体中的核心和侧心是大的应力中心,由它们产生的应力场比其本身的线度大好几倍。核心和侧心的形成与固液界面的形状变化有关,核心和侧心是沿 $\langle 111 \rangle$ 方向凸界面生长 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体的典型特征。核心对应于 $\{112\}$ 晶面族中的三个面和 $\{110\}$ 晶面族中的三个面;而侧心对应于 $\{112\}$ 晶面族中的三个面^[11]。由于温度场的差异和 Yb^{3+} 掺杂离子的分凝作用,造成晶体核心和侧心与其周围折射率、晶格常数、应力、 Yb^{3+} 掺杂浓度的局部差异。一般地,沿 $\langle 111 \rangle$ 方向生长的稀土离子掺杂的 YAG 晶体的核心最小,激光性能好。因此,在 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体的生长中,也采用 $\langle 111 \rangle$ 生长方向。通过 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体在 940nm 处的特征吸收光谱研究,得到核心区的 Yb^{3+} 离子掺杂浓度比晶体的其它区域约高 5%。从图 3 还可看出:退火前晶体的核心区较大,退火后核心区变小,而且可能由于消除了由 Yb^{2+} 所致的晶格畸变,生长条纹有些变细。这与正交偏光显微镜下观察到的晶体应力相一致。

4 结 论

(1) $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体中的生长缺陷主要有生长条纹、核心和位错等。采用高温、氧气氛退火工艺,可以减小晶体的应力,从而提高晶体的光学均匀性和结构完整性。

(2) $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体中的位错主要起源于籽晶、杂质粒子以及生长初期的晶种和晶体界面处位错成核。

(3) $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体中的位错走向垂直于生长界面,符合能量最低原理。因此,采用凸界面

生长工艺可以有效的消除晶体中的位错。

参 考 文 献

- 1 Lacovara P, Choi H K, Wang C A, et al. Room-temperature Diode-pumped Yb:YAG Laser. *Opt. Lett.*, 1991, **16**(14): 1089—1091
- 2 Payne S A, Smith L K, DeLoach L D, et al. Laser, Optical and Thermomechanical Properties of Yb-doped Fluorapatite. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1994, **30**(1): 170—179
- 3 Payne S A & Krupke W F. A Glimpse into the Laser Crystal Ball. *Optics & Photonics News*, 1996 August; 31—35
- 4 DeLoach L D, Payne S A, Chase L L, et al. Evaluation of Absorption and Emission Properties of Yb³⁺ Doped Crystals for Laser Applications. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1993, **29**(4): 1179—1191
- 5 Giesen A, Hugel A, Voss A, et al. Scalable Concept for Diode-pumped High-power Solid-State Lasers. *Appl. Phys. B*, 1994, **58**: 365—372
- 6 Brauch U, Giesen A, Karszewski M, et al. Multiwatt Diode-pumped Yb:YAG Thin Disk Laser Continuously Tunable between 1018 and 1053nm. *Opt. Lett.*, 1995 **20**(7): 713—715
- 7 杨培志, 徐军, 邓佩珍, 等. Yb:YAG 晶体生长与激光性能. *人工晶体学报*, 1998 **27**(3): 229—232
- 8 邓佩珍, 等. 掺钕钇铝石榴石单晶的位错研究. *物理学报*, 1976, **25**(4): 284—291
- 9 Schmidt H & Weiss R. Dislocation Propagation in Czochralski Grown GGG. *J. Crystal Growth*, 1978, **43**: 515—525
- 10 Klapper H, Kuppers H. Directions of Dislocation Lines in Crystals of Ammonium Hydrogen Oxalate Hemihydrate Grown from Solution. *Acta Crystal.* 1973, **A29**: 495—503
- 11 麦振洪, 葛培文, 崔树范, 等. 钇铝石榴石单晶缺陷的 X 射线透射形貌术观察. *物理学报*, 1981, **30**(7): 999—1002