

阻热法引上生长 Nd:YAG 时界面转换前后出现的组分过冷和位错增殖现象

陈庆汉 谢三文

(成都西南技术物理研究所)

1980年3月31日收到

一、引言

众所周知,平坦界面有利于抑制小晶面(核心和侧心)和位错的形成,是获得无缺陷单晶的基本条件^[1]。但晶体中已存在的位错则会延伸到晶体下部去。而在凸界面情况下,位错会沿大致垂直生长界面的方向伸展,最后排除于表面^[2,3]。但凸界面本身容易产生核心和其它缺陷^[2]。为综合平、凸界面各自的优点,有人已用变转速办法得到了无核心无位错的 GGG 单晶(引晶放肩时用低转速凸界面排位错,然后用高转速平界面消核心)^[4,5]。但在界面转换时,晶体中易出现严重组分过冷现象^[5,6]和位错增殖^[7,8]。本文试图根据熔体中液流反转引起界面转换这一现象及其理论分析^[9-11],进一步讨论变转速办法成功的机理。

二、实验

用石墨电阻炉生长晶体。钼片坩锅 $\phi 60 \times 30$ 毫米。生长时只转动晶体。生长参数有以下三种:

1. 恒拉速、恒转速: 拉速 1.2—1.5 毫米/小时, 转速 70—80 转/分(I型)。

2. 恒拉速, 以低转速(15—40 转/分)引晶和放肩, 进一步放肩和转肩时以 2—4 转/小时的速度逐渐增大转速(II型)。

3. 恒拉速, 以低转速(30 转/分)引晶放肩至 $\phi 18$ 毫米左右, 然后缓放转肩, 并以 4—8

转/小时的速度逐渐升高转速(III型)。

取样部位是晶体头部的纵向切片, 抛光后用显微镜以正交偏光和明场两种方式观察界面转换前后反映固液界面形状的生长条纹, 观察反映位错线的纵向应力条纹及组分过冷引起的云层和丝状物等缺陷。放大倍数为 5—1200 倍。

三、结果

1. I型晶体(图1)

观察到两种情况: 界面形状无明显突变(暂不讨论)和明显突变, 后一类样品随晶体直径增大, 界面由很凸的倒圆锥形突变成凸拱形。



图1 I型晶体头部正交偏光照片, 右下角是熔质尾迹放大图

核心有时也会突然消失。在突变部位及其下方,同时出现严重组分过冷缺陷(溶质尾迹)和纵向应力条纹。纵向应力条纹沿大致垂直生长界面方向延伸下去,根据 B. Cockayne 等人观察,这与位错线相对应^[2]。在该部位前后,晶体直径有较快增大的趋势。下面拱形界面不太稳定地保持一段时间,随直径增大,界面又一次突变,凸度变得更小。

2. II型晶体(图2)

随晶体直径和转速缓慢增大,在界面突变前,晶体头部的核心已逐渐变粗和散开,随之在核心消失下方产生组分过冷缺陷和纵向应力条纹。可以看到,界面突变时熔化了伸入熔体的晶体顶部,但未能将早期产生的组分过冷缺陷和位错全部熔掉。突变后界面平坦或微凹,界面突变本身似未引起新的缺陷,但界面突变前产生的组分过冷缺陷和纵向应力条纹仍延伸下来了。



图2 引晶放肩的起始转速为40转/分时,以~2转/小时升高转速生长的晶体头部正交偏光照片

3. III型晶体(图3)

转速较快增大时,界面由很凸的倒圆锥形突变为平坦,突变处核心消失。正交偏光和明场观察表明,在界面突变部位上完全看不到组

分过冷产生的熔体包裹物和网状沟槽等缺陷以及反映位错增殖的纵向应力条纹。看来用第三种工艺可以避免放肩部位和界面转换部位上出现组分过冷缺陷和位错增殖现象。

但在界面突变后不久,可以看到界面又突变成波浪起伏状。在反熔部位上产生大量位错。

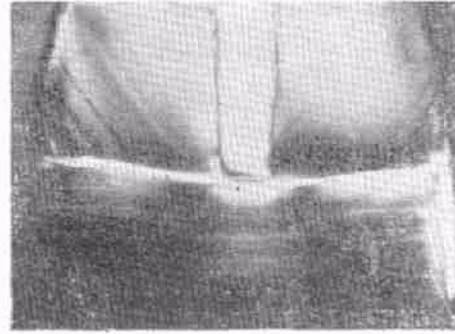


图3 III型晶体头部的正交偏光照片

四、讨 论

1. 据报道^[9-11],增大晶体直径和转速使熔体雷诺数超过临界值时,液流由自然对流占优势突变为强迫对流占优势,相应界面由凸变平。

但我们观察到,界面转换过程中,在很凸和平坦界面之间,还存在凸度不同的过渡界面,形态如凸拱形、波浪形等。这似乎表明,在自然对流占优势和强迫对流占优势的液流状态之间,还存在某些亚稳的过渡液流状态。此时,或者液流大大减弱,引起严重组分过冷缺陷,造成位错大量增殖^[6](I型晶体的情况);或者液流状态容易从一种类型过渡到另一类型,从而在晶体中产生位错^[7,8](III型晶体下部的情况)。

为避免这类情况,显然应使液流远离中间过渡状态,这可以通过增大直径和转速使熔体雷诺数远离临界值来达到。

2. 但是在从低转速到高转速的连续变化过程中,如上所述,液流必然经历中间过渡状态而在晶体中留下大量缺陷和位错。这些缺陷是如何除掉的呢?我们所做的三组实验可以清楚地说明消除这些缺陷的过程的机理(参见图4)。

增大转速或直径使液流反转时,强迫对流

会把晶体顶端的倒圆锥熔去^[10]。我们设想,在液流经历过渡状态时产生了严重缺陷。由图4可见,如果从很凸的界面到平界面之间的过渡

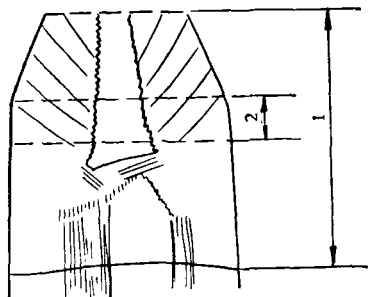


图4 线段1表示图2中从凸到平界面的实际过渡时间;线段2表示理想过渡时间

时间很长,这些缺陷将被拉出液面而保留在平界面上(N型晶体)。如果过渡时间较短,则有可能把这些缺陷全部熔掉而留下一个无位错的平界面(III型晶体)。

所以这种反熔过程如果合理应用的话,可以起到彻底清除变转速过程中产生的缺陷及位错的作用。关键在于过渡时间应适当缩短,以及最终转速使液流远离临界过渡状态。在以上三组实验中,增大晶体直径和转速都起着压缩过渡时间的作用,但由于转速可以大幅度地变化,所以看来改变转速是实现压缩过渡时间的一种有效办法。

3. 采用变转速方法时,可以根据液面上的

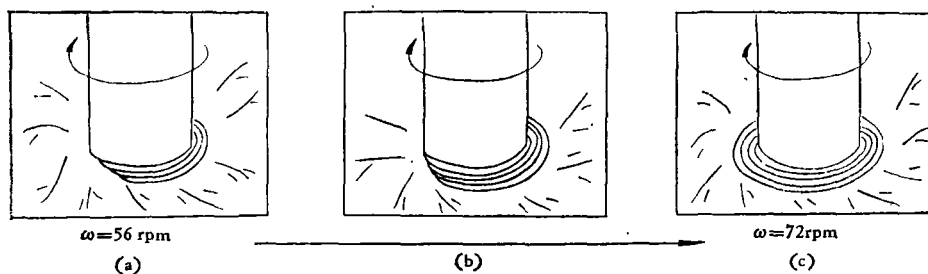


图5 增大转速时,液面上液流花样的变化过程

液流线花样来适当调节生长参数。如图5所示,增大转速后,逐渐出现环状液流线,到全部包围住晶体成一圆圈时,界面肯定已转换过来了。这时液面上往往出现异常现象:液面浑暗,以致难以判断界面处直径变化情况。此时保持环状光圈的大小近似不变,是保持平界面和基本等径的简捷办法。还应注意适当增大光圈的尺寸使液流远离临界过渡状态。

最后要指出一点,快转不是唯一的普遍的办法。结合不同热场分布,界面转换过程不尽相同,只有根据实验,结合具体装置和温场分布,得到没有位错线的平坦稳定界面,才能肯定生长无位错晶体的工艺(参阅文献[14])。

本工作得到我单位电阻炉小组,特别是姚光华、王廷印和周庆模同志的帮助。四川大学罗桂蓉同志和成都地质学院周淑和同志协助拍照,张乐德同志具体指导稿件修改,一并致谢。

参 考 文 献

- [1] 宫沢信二郎, 研究实用化報告, **23** (1974), 1321.
- [2] B. Cockayne and J. M. Rostington, *J. Mater. Sci.*, **8**(1973), 601.
- [3] 中国科学院上海光学精密机械研究所晶体检验组, 物理学报, **25**, (1976), 284.
- [4] B. Cockayne et al., *J. Mater. Sci.*, **4**(1976), 236.
- [5] J. C. Brice et al., *J. Crystal Growth*, **24/25** (1974), 429.
- [6] 中国科学院上海光学精密机械研究所801组, 激光, **6**(1979), 48.
- [7] C. D. Brandle, *J. Crystal Growth*, **42**(1977), 400.
- [8] C. D. Brandle, *J. Appl. Phys. part II*, **49**(1978), 1855.
- [9] G. Zydzik, *Mater. Res. Bull.*, **10**(1975), 701.
- [10] K. Takagi et al., *J. Crystal Growth*, **32**(1976), 89.
- [11] B. Cockayne et al., *J. Mater. Sci.*, **11**(1976), 259.
- [12] J. R. Carruthers, *J. Crystal Growth*, **36**(1976), 212.
- [13] J. C. Brice and P. A. C. Whiffin, *J. Crystal Growth*, **38**(1977), 245.
- [14] 张乐德等, 硅酸盐学报, **8**(1980), 114.