

钇铝石榴石单晶缺陷的 X 射线透射形貌术观察

麦振洪 葛培文 崔树范 肖楠 吴兰生

(中国科学院物理研究所)

1980 年 10 月 21 日收到

提 要

对提拉法生长的 YAG 单晶首次用 X 射线透射形貌术观察。揭示了 YAG 单晶的生长条纹、奇异小面以及垂直于生长条纹的位错线束等生长缺陷,并对这些缺陷作了简要的分析。

一、前 言

钇铝石榴石单晶 ($Y_3Al_5O_{12}$, 简称 YAG 单晶) 是一种优质激光基质晶体。自 1964 年 Linares^[1] 用 Czochralski 方法生长出大块 YAG 单晶以来,由于激光技术的发展, YAG 晶体的研究工作取得了很大的进展。不少作者对其生长缺陷以及光学、激光等性能进行了大量的研究。表明 YAG 生长过程容易引入某些缺陷,而这些缺陷的存在直接影响 YAG 激光器的性能。由于 YAG 单晶对 X 射线的线吸收系数很大,因而对其缺陷的研究多用 X 射线反射形貌术和光学方法^[2-4]。本文首次应用 X 射线透射形貌术对 YAG 单晶的生长条纹、奇异小面以及沿生长方向的位错线束进行了研究,并作了简要的分析。

二、实验与结果

实验用的晶体是用 Czochralski 方法沿 $[11\bar{1}]$ 方向生长的 YAG 单晶。1*、2* 样品为同一根晶体的 $(11\bar{1})$ 横切片和 (110) 纵切片。3* 样品为另一晶体的 (112) 纵切片¹⁾。样品经 X 光定向切片、研磨抛光,其中 3* 样品还经过化学腐蚀,最后厚度约为 $130\mu\text{m}$,其表面分别平行于 $(11\bar{1})$ 、 (110) 和 (112) , 偏差约 6° 。

透射 X 射线形貌图在日本 Rigaku RU-1000 转靶 X 光机上用大样品 Lang 相机拍摄。照相条件是 $\text{MoK}\alpha_1$ 辐射, $\mu t = 3$ 。图 1(a) (见图版 I) 为 1* 样品 $[(11\bar{1})$ 横切片] 透射投影形貌图。可以清楚地看到“核心”、“侧心”、生长层和表皮。中心部分是“核心”。它由发育较好的 (112) , (211) , (121) 三个小面和 (110) , (101) , (011) 三个小面组成。生长层呈“年轮”状。同时,可以看到 $(\bar{1}21)$, $(1\bar{1}2)$ 和 $(21\bar{1})$ 三个小面“侧心”。在靠近晶体外

1) 1*, 2* 样品是中国科学院上海光学精密机械研究所提供的,其平均拉速 1.88mm/hr , 掺 3% Nb_2O_5 。3* 样品由华北光电技术研究所提供。

边缘,存在着大量的缺陷. 所得形貌图花样与文献[2]和[4]的观察结果一致. 图1(b)(见图版I)是2[#]样品[(110)纵切片]形貌图. 清晰地揭示了生长条纹. 图象左下角和右上角消光是由于样品弯曲所致. 图2(见图版I)是3[#]样品的形貌图. 样品系(112)切片.(a)为44 $\bar{4}$ 衍射,可以看到清晰的生长条纹以及与其垂直的位错线束.(b)是4 $\bar{4}$ 0衍射,在此衍射条件下,生长条纹几乎完全消光,只见到纵向走向的位错线束.

作为对照,我们还对样品进行了光学偏光和干涉法观察. 偏光观察在英国 Verkers 投影显微镜上进行,干涉观察采用偏振的氩-氖激光入射到台曼型干涉仪上进行. 图3(见图版II)为1[#], 2[#]样品正交偏光图. 图4(见图版II)为1[#]样品光学干涉图. 从图3(a)和图4可以看到核心部分是一个应力集中区. 图5(见图版II)是3[#]样品的正交偏光图,其(a)入射光电矢量方向与生长轴方向的夹角为45°; (b)入射光电矢量方向与生长轴方向的夹角为0°. 比较图1, 3和2, 5,可知光学偏光图与X射线形貌图相仿. 我们还用氩-氖激光束垂直照射2[#]样品和3[#]样品,可以看到生长条纹起了类似衍射光栅的作用. 光束产生衍射和散射效应^[4].

三、讨 论

上述观察直观地表明,用提拉法生长的YAG单晶体在生长过程中容易引入生长缺陷,如“核心”、“侧心”、生长条纹、位错和包裹物等. 下面简要地讨论这些缺陷的形态.

1. 生长条纹及其引起的晶格参数和应力变化

图1—3,5都显示了晶体生长条纹. 这些清晰有序的生长条纹展现了晶体生长历史和固液界面的变化情况. 从图1可知,2[#]样品在生长初期转速较慢,熔体中自然对流为主,固液界面为凸形,后来由于转速、温场等因素的变化,熔体中强迫对流的影响逐渐显著,固液界面慢慢变平,甚至后来变成凹形. 这些生长条纹主要是由于生长条件的波动引起生长率的变化,进而引起杂质分布的变化而形成的. 从图1可见生长层大致分两类. 一类是衬度比较深,条纹较粗,其间距在晶体上部约为0.7mm,在下部约为1.5mm. 这类生长条纹可能是由熔体对流引起. 在这些粗条纹之间的较细的条纹,其间距约为0.2mm,这类条纹可能是晶体转动或温度起伏的宏观反映. 由于杂质的作用,引起晶体折射率、晶格参数,应力的局部差异,从而产生光散射、X射线衍射和偏振光干涉现象.

图2和图5中生长条纹衬度反差变化反映了生长条纹引起的晶格参数和应力局部变化. 根据X射线形貌术衍射理论和光学偏光干涉原理,可知其晶格应变矢量方向和主应力方向均沿晶体生长轴方向,即 $[11\bar{1}]$ 方向. 这个结果与生长实际相符.

2. 生长小面和固液界面的临界曲率

图1(a)中出现的“核心”和“侧心”是典型的沿 $\langle 111 \rangle$ 方向生长凸形固液界面的生长缺陷. 核心由 $\{112\}$ 面族中与 $[111]$ 方向成 19.47° 角的三个面和 $\{110\}$ 面族中与 $[111]$ 方向成 35.26° 角的三个面组成. 侧心对应 $\{112\}$ 面族中与 $[111]$ 方向成 61.87° 角的三个面^[4](见图1). 图3(a)表面“核心”和“侧心”是巨大的应力中心,由它们引起的应力场能

比它们本身的线度大好几倍。

“核心”和“侧心”的出现与凸形固液界面上 (112) 小面的形成密切相关。Dikohoff^[5-7] 等人研究半导体、氧化物晶体当熔体生长中固液界面为凸形时小面生长情况表明: 界面的类型和结构决定了界面的生长机制, 而界面的生长机制又决定了生长时界面的形态以及晶体性质的差异。从而得出出现小面的必要条件是这些奇异小面与固液界面相切, 由此可导出出现小面的固液界面临界曲率半径 $R_{\text{临}}^{\text{固}}$ 为

$$R_{\text{临}}^{\text{固}} = \frac{d}{2 \sin \theta_{\text{min}}},$$

其中 d 为晶体直径; θ_{min} 为奇异小面的面法线与生长方向的最小夹角。对 [111] 生长的 YAG, $\theta_{\text{min}} = 19.47^\circ$ 。在我们的实验中, $d = 15\text{mm}$, 计算得 $R_{\text{临}}^{\text{固}(112)} = 22.5\text{mm}$, $R_{\text{临}}^{\text{固}(110)} = 12.99\text{mm}$ 。实际测得固液界面曲率半径 $R = 5.28\text{mm}$, 即 $R < R_{\text{临}}^{\text{固}}$, 故在此生长条件下, 必然出现小面。

3. 位错线束的分布

从图 2 可看到沿轴向方向存在大量的位错线束, 其走向垂直于生长条纹。这些位错线束大部分是从籽晶和生长初期产生, 然后延伸下去的。仔细分析, 这些位错线束可分为三类。第一类是衍射矢量为 $[44\bar{4}]$ 时, 衍射衬度为负; 而衍射矢量为 $[4\bar{4}0]$ 时, 衬度为正 (见图 2 中部和右部的位错线束), 这是位错线束的动力学衍射象。根据动力学衍射理论和位错理论得知, 它们的 Burgers 矢量可能沿 $[1\bar{1}1]$ 方向或者是混合型位错线束。第二类位错线束是对上述两个衍射其衬度均为正 (见图 2 左部)。同理其 Burgers 矢量可能沿 $[100]$ 方向或混合型位错线束。第三类位错线束是对 $[4\bar{4}0]$ 衍射中出现正衬度而在 $[44\bar{4}]$ 衍射中消光。它们可能是 Burgers 矢量沿 $[1\bar{1}0]$ 方向、位错线本身沿 $[11\bar{1}]$ 方向的纯刃型位错。

从以上分析可见, 用透射 X 射线形貌术观察 YAG 单晶, 能得到丰富的缺陷信息。在生长条纹和小面、核心、侧心等的观察上, 它的结果同光学观察结果是一致的。此外, 它还能得到清晰的位错线图, 这是光学观察所不及的。为进一步提高单晶质量, 缺陷观察还必须同生长紧密配合。

本工作得到邓佩珍、钱振英、张凤兰等同志的帮助和有益的讨论, 谨致感谢。

参 考 文 献

- [1] R. C. Linares, *Solid State Commun.*, **2** (1964), 229.
- [2] 古元新、肖楠、范海福, 科学通报, **23** (1978), 651.
- [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] 中国科学院物理研究所钇铝石榴石研究组, 物理, **3** (1974), 134.
- [5] J. A. M. Dikohoff, *Solid State Electronics*, **1** (1960), 202.
- [6] W. D. Edwards, *Can. J. Phys.*, **38** (1960), 439.
- [7] J. Basterfield, *et al.*, *J. Mater. Sci.*, **3** (1968), 33.
- [8] 闵乃本等, 物理学报, **28** (1979), 285.

THE OBSERVATION ON DEFECTS IN YAG SINGLE CRYSTAL BY X-RAY TRANSMISSION TOPOGRAPHY

MAI ZHEN-HONG GE PEI-WEN CU I SHU-FAN
XIAO NAN WU LAN-SHENG
(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

ABSTRACT

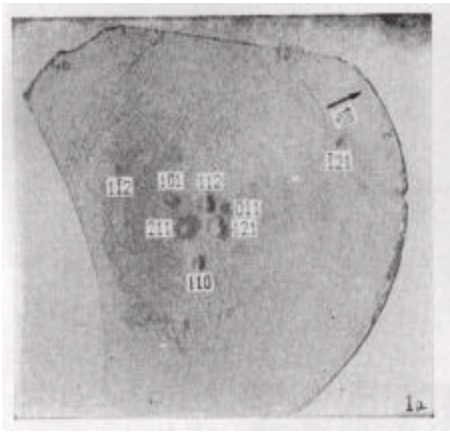
It was the first time to investigate defects in YAG single crystal grown by Czochralski method by means of X-ray transmission topography. Several grown-in defects, such as growth striations, singular facets and dislocation bands perpendicular to the grown striation, were revealed. The configuration and formation of these defects were discussed in brief.

更正 (Erratum)

面心立方点阵上 Ising 自旋 1/2 系统反铁磁性和 AB 合金超点阵的统计理论——配分函数的级数展开法

刘志明 张富春 徐文兰 李荫远

物理学报, 30, 第 6 期 (1981), 第 747—760 页. 第 755 页, 第十一行至第十三行的一段: “ F_h 的 $\dots t_c$ 附近”应删去. 第 755 页, 倒数第五行: $\ln \lambda_A = \ln \lambda_B + a$ 和倒数第三行: $a = \ln(\lambda_A/\lambda_B)$ 均应删去. 第 756 页, 第三行的 H^* 的表式中的 a 应为 $\ln(\lambda_A/\lambda_B)$.

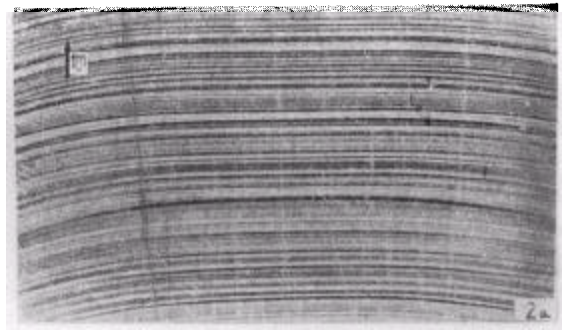


(a) 1# 样品, $\bar{6}42$ 衍射(样品直径为 15mm)

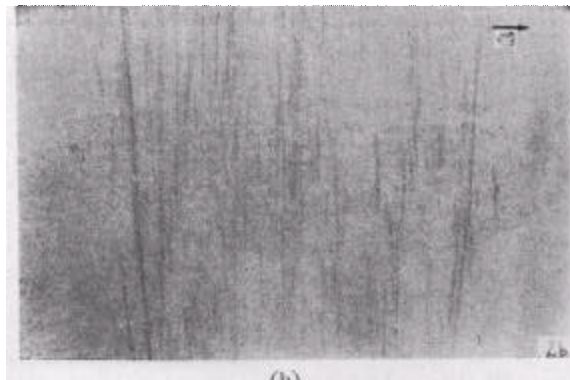


(b) 2# 样品, $\bar{4}4\bar{4}$ 衍射(样品尺寸为 20×15mm)

图 1 YAG 单晶 X 射线透射形貌图

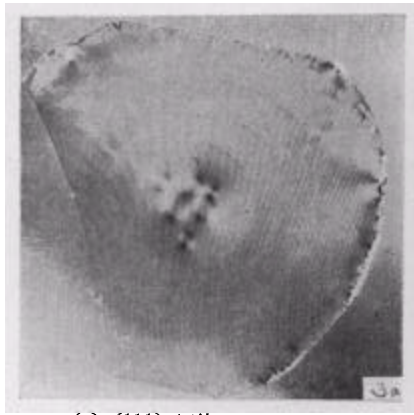


(a)

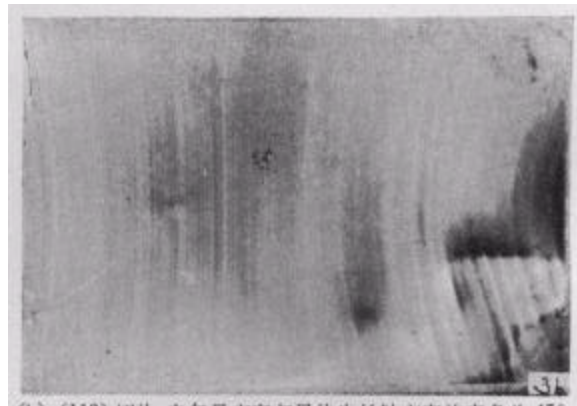


(b)

图 2 3# 样品 X 射线透射形貌图(样品尺寸为 19×10mm)



(a) (111) 切片



(b) (110) 切片,电矢量方向与晶体生长轴方向的夹角为 45°

图 3

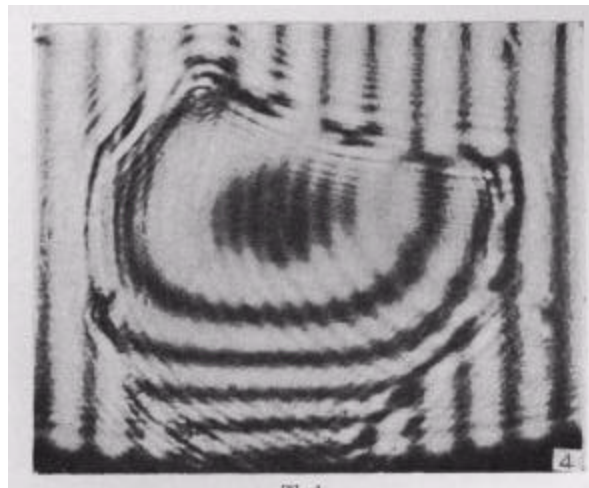
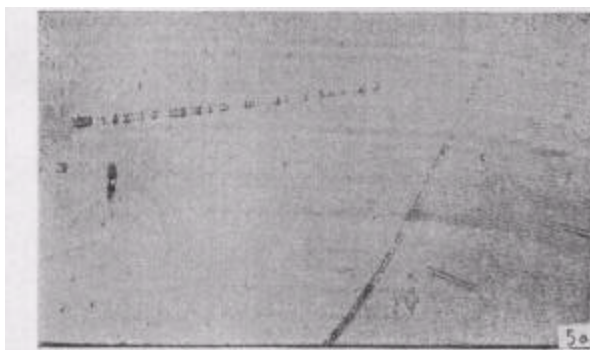
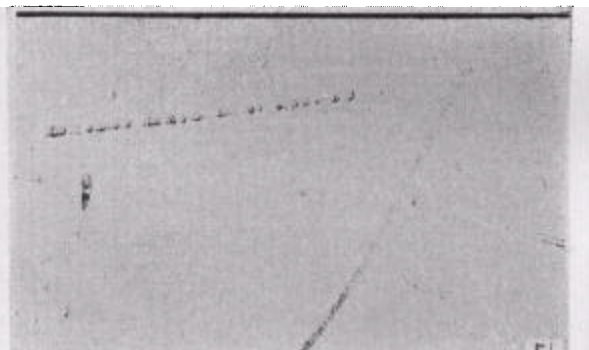


图 4



(a)



(b)

图 5