

УДК 621.373.826

С. А. ГУРЕЦКИЙ¹, А. М. ЛУГИНЕЦ¹, И. М. КОЛЕСОВА¹, А. В. КРАВЦОВ¹, Н. В. КУЛЕШОВ²,
С. В. КУРИЛЬЧИК², В. Э. КИСЕЛЬ², В. Б. МАЛЮТИН³, А. А. ЕРМОЛАЕВ⁴, С. А. КАРПЕНКО⁴

ОСОБЕННОСТИ ВЫРАЩИВАНИЯ И СВОЙСТВА ТОНКОПЛЕНОЧНЫХ МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ СТРУКТУР НА ОСНОВЕ ДВОЙНЫХ ВОЛЬФРАМАТОВ

¹ Научно-практический центр НАН Беларуси по материаловедению

² Институт оптических материалов и технологий БНТУ

³ Институт математики НАН Беларуси

⁴ Республиканское унитарное предприятие «Завод «Оптик»

(Поступила в редакцию 30.08.2013)

Введение. Несмотря на доминирующее положение на современном рынке миниатюрных лазерных источников лазерных диодов и их высокую эффективность (КПД достигает 70 %), диоды не могут в полной мере удовлетворить возрастающие потребности современной техники из-за принципиальных ограничений, которые заключаются в многомодовом составе и широком спектре излучения, большом угле расходимости и асимметрии выходного пучка, зависимости длины волны излучения от температуры на *p-n*-переходе, невозможности генерации коротких нано- и субнаносекундных импульсов, а также неудовлетворительной временной стабильности основных выходных параметров [1, 2]. Все эти ограничения можно преодолеть в компактных твердотельных лазерах с диодной накачкой [3, 4]. Достижения в технологии изготовления полупроводниковых лазеров изменили и подходы в конструировании твердотельных лазеров. В частности, это проявилось в появлении новых типов твердотельных лазеров с диодной накачкой – микролазеров, микрочип-лазеров, дисковых и волноводных лазеров, в которых используются активные среды на основе оксидных монокристаллических структур. При этом одними из наиболее перспективных материалов для твердотельных лазеров считаются монокристаллы на основе двойных вольфраматов. Такие лазеры, изготовленные по интегральной технологии, перспективны для применения в качестве элементов оптических интегральных схем, в волоконно-оптической связи, в сферах биомедицины и оптического вычисления, а также других областях, требующих наличия компактных и эффективных лазерных излучателей [5].

Основным методом получения оксидных монокристаллических пленочных структур остается метод жидкофазной эпитаксии из раствора-расплава (ЖФЭ). Однако до настоящего времени получение структурно совершенных эпитаксиальных пленок с воспроизводимыми физическими свойствами сопряжено со значительными трудностями. Одной из основных причин такого положения вещей являются трудности формирования достаточно тонкого планарного перехода подложка–пленка толщиной порядка от десятка до нескольких сотен нанометров высокого структурного совершенства, определяющего качество всей структуры. Решение этой задачи напрямую связано с повышением эффективности метода управляемой кристаллизации за счет привлечения дополнительных информационных каналов, таких, к примеру, как исследование механизма тепломассопереноса в объеме раствора-расплава и на границе раздела подложка–раствор-расплава [6]. В частности, структурное качество кристаллов прямо пропорционально скорости ламинарных конвективных потоков на фронте кристаллизации, однако превышение сверхкритической скорости приводит к срыву ламинарных потоков в турбулентный режим, что делает невозможным выращивание качественных кристаллов. Поэтому представляется целесообразным добиться максимально возможной скорости ламинарных конвективных потоков за

счет оптимизации тепловых потоков в зоне кристаллизации и исследовать генерационные характеристики эпитаксиальных монокристаллических слоев, полученных в новых условиях.

Влияние тепловых полей на динамику конвективных потоков в системе $K_2W_2O_7-\alpha-KR(WO_4)_2$. Исследуем зависимость между величиной радиального температурного градиента и скоростью конвекции в системе $K_2W_2O_7-\alpha-KR(WO_4)_2$ (где R – редкоземельный ион).

Перенос кристаллообразующих компонент к фронту кристаллизации осуществляется ламинарными конвективными потоками, имеющими термогравитационную природу происхождения. В этом случае скорость ламинарных конвективных потоков должна быть максимально возможной с целью увеличения вклада поверхностной диффузии кристаллообразующих компонент в процессе кристаллизации [7].

Установлено, что скорость движения ламинарных конвективных потоков связана с разностью температур между центральной и периферийной областями в приповерхностной области ($T_1 - T_2$), т. е. радиальным температурным градиентом.

Для исследования этой зависимости используется уравнение сохранения энергии совместно с уравнениями, описывающими движение конвективных потоков в растворе-расплаве.

Уравнение сохранения энергии в цилиндрической системе координат имеет вид [8]:

$$V_r \frac{\partial T}{\partial r} + V_z \frac{\partial T}{\partial z} = \frac{1}{Pr} \left(\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right), \quad (1)$$

где T – температура; V_r, V_z – радиальная и осевая компоненты вектора скорости, $Pr = \frac{v}{a} = \frac{v \rho_l C_l}{\lambda_l}$ – число Прандтля, ρ_l – плотность жидкости, C_l – удельная теплоемкость, λ_l – коэффициент теплопроводности, v – вязкость.

Уравнение (1) выписано для безразмерных величин. Величины, имеющие размерность и обозначаемые буквами с чертой наверху, связаны с безразмерными величинами соотношениями

$$\bar{r} = R_1 r, \quad \bar{z} = R_1 z, \quad \bar{V}_r = V_r v R_1^{-1}, \quad \bar{V}_z = V_z v R_1^{-1}, \quad \bar{T} = T_k T,$$

где R_1 – радиус основания контейнера; T_k – температура; T – безразмерная температура; V_r, V_z – безразмерные компоненты радиальная и осевая вектора скорости, связанные с безразмерными функциями вихря ω и тока ψ соотношениями (4), (5).

Уравнения для функций тока ψ и вихря ω в цилиндрической системе координат имеют вид

$$\frac{\partial}{\partial r} + \left(\frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2} = \omega, \quad (2)$$

$$V_r \frac{\partial \omega}{\partial r} + V_z \frac{\partial \omega}{\partial z} - V_r \frac{\omega}{r} = \frac{\partial^2 \omega}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \omega}{\partial r} + \frac{\partial^2 \omega}{\partial z^2} - \frac{\omega}{r^2} - Gr \frac{\partial T}{\partial r}, \quad (3)$$

где $Gr = \frac{\beta g R_1^3 T_k}{v^2}$; v – вязкость; β – коэффициент теплового объемного расширения; g – ускорение свободного падения; R_1 – радиус основания контейнера; T_k – температура, T – безразмерная температура; V_r, V_z – безразмерные радиальная и осевая компоненты вектора скорости, связанные с безразмерными функциями вихря ω и тока ψ соотношениями (4), (5). Связь безразмерных величин $z, r, V_z, V_r, \theta, \omega, \psi$ и соответствующих размерных величин, которые обозначаются буквами с чертой наверху, дается равенствами

$$\bar{r} = R_1 r, \quad \bar{z} = R_1 z, \quad \bar{V}_r = V_r v R_1^{-1}, \quad \bar{V}_z = V_z v R_1^{-1}, \quad \bar{T} = T_k T, \quad \bar{\omega} = v R_1^{-2} \omega, \quad \bar{\psi} = v R_1 \psi.$$

Вихрь определяется как

$$\omega = \left(\frac{\partial V_r}{\partial z} - \frac{\partial V_z}{\partial r} \right). \quad (4)$$

Значения скоростей $V_{r,1}$, $V_{z,1}$ связаны с функциями тока формулами

$$V_r = \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi}{\partial z}, \quad V_z = \frac{1}{r} \frac{\partial \Psi}{\partial r}. \quad (5)$$

Решая уравнения (1)–(3) с помощью метода конечных разностей [9] и используя формулы (5) мы определяем скорости потоков в растворе-расплаве. Решая указанные уравнения, мы также находим радиальный температурный градиент ($T_1 - T_2$). Таким образом, численно исследуется зависимость между величиной радиального температурного градиента и скоростью конвекции в режиме термогравитационного массопереноса ламинарными конвективными потоками.

В качестве примера были проведены вычисления скорости потоков в растворе-расплаве во всем объеме в случае $T_2 - T_1 = 2,1^{\circ}$ и $T_2 - T_1 = 5,2^{\circ}$ соответственно. Установлено, что максимальные скорости конвективных потоков в безразмерном виде имели величины 0,614 и 1,634 соответственно. Отсюда видно, что с увеличением температурного градиента увеличивается скорость массопереноса ламинарными конвективными потоками. В силу условий рассматриваемой задачи область возможных значений температурного градиента и скорости массопереноса ламинарными конвективными потоками ограничена. Результаты численного эксперимента позволили выбрать режим температуры охлаждающего контура и температуры нагревательных элементов термической камеры, обеспечивающих максимально возможную скорость ламинарных конвективных потоков. В частности, если в традиционно используемой технологии выращивания в системе $K_2W_2O_7-\alpha-KR(WO_4)$ температурный перепад между контурами нагрева и охлаждения, определяющих скорость конвективных потоков, составляет 210–180 °С, то в результате моделирования процессов теплообмена представилось возможным увеличить температурный перепад до 280–250 °С при сохранении механизма массопереноса ламинарными конвективными потоками. В результате было достигнуто увеличение скорости потока в 1,7–2 раза. Полуширина кривых качаний для полученных монокристаллических слоев составляла 70–110", что свидетельствует о высокой степени структурного совершенства.

Исследование генерационных характеристик монокристаллических эпитаксиальных структур двойных вольфраматов. Исследование генерационных характеристик проводилось на примере монокристаллического слоя $Yb:\alpha KY(WO_4)_2 / \alpha KY(WO_4)_2$ (KYW/KYW) в конфигурации планарного волновода в монолите резонатора, схема которого представлена на рис. 1 [10].

Длина слоя вдоль направления распространения излучения составляла 4 мм. В качестве источника накачки использовался одномодовый лазерный диод с волоконным выходом. Для того чтобы получить поляризацию излучения диода вдоль оси N_m внутри монокристаллического слоя KYW, применялась полуволновая пластинка. Оптический вентиль на основе фарадеевского ротатора использовался для предотвращения обратного отражения излучения, которое при попадании в оптическое волокно лазерного диода могло привести к его повреждению. Излучение накачки при помощи микрообъектива коллимировалось, проходило через пластинку, оптиче-

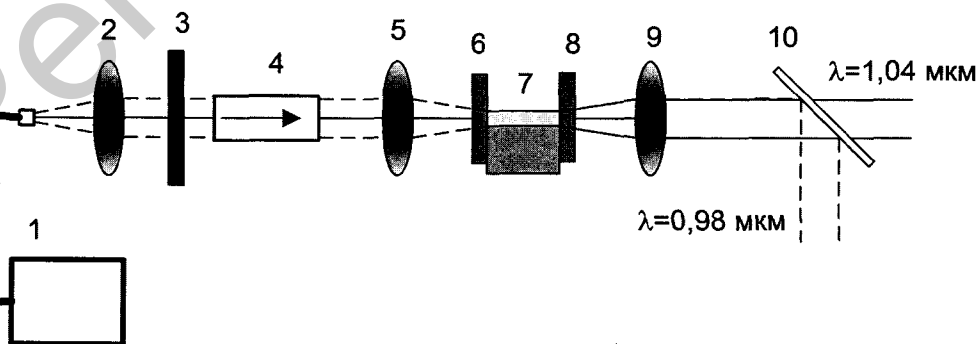


Рис. 1. Схема лазера на основе монокристаллического слоя $Yb:KYW$ в конфигурации планарного волновода: 1 – лазерный диод с волоконным выходом; 2 – микрообъектив, $\times 30$; 3 – пластинка $\lambda/2$; 4 – оптический вентиль; 5 – микрообъектив, $\times 10$; 6 – входное зеркало; 7 – образец монокристаллического слоя $Yb:KYW$ на подложке; 8 – выходное зеркало; 9 – микрообъектив, $\times 10$; 10 – дихроичное зеркало

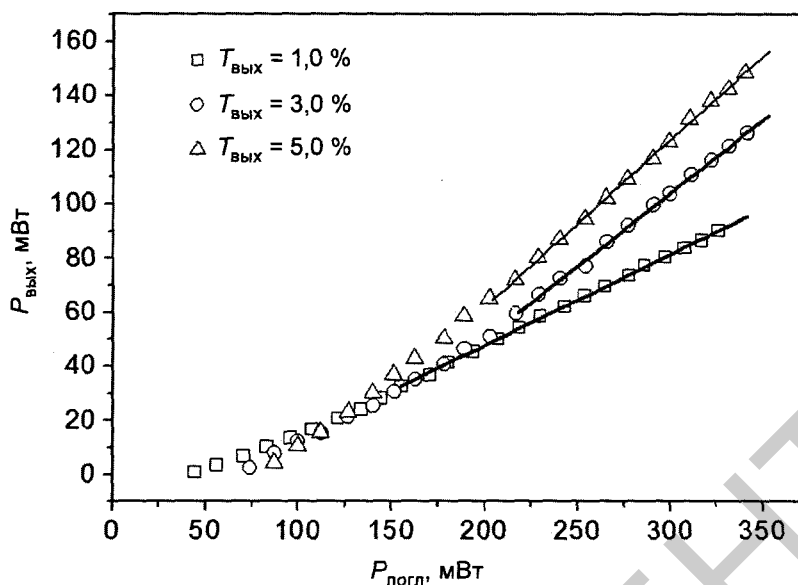


Рис. 2. Зависимость мощности генерации от поглощенной мощности накачки в непрерывном режиме работы

ский вентиль и через входное зеркало фокусировалось на входном торце монокристаллического слоя при помощи микрообъектива. Диаметр сфокусированного пятна на торце монокристаллического слоя составлял 18 мкм. В качестве входного и выходного зеркал использовались тонкие кварцевые пластины с нанесенными диэлектрическими покрытиями, которые закреплялись на торцах образца на оптическом контакте, создавая монолитную конфигурацию резонатора. При этом входное зеркало имело высокий коэффициент отражения в спектральном диапазоне 1010–1100 нм и >90 % пропускания излучения накачки на длинах волн около 980 нм. Выходные параметры лазера исследовались для трех выходных зеркал с пропусканием на длине волны генерации 1,0, 3,0 и 5,0 %. Для разделения лазерного излучения и остаточного излучения накачки использовались коллимирующий микрообъектив и дихроичное зеркало. В процессе проведения лазерных экспериментов активное охлаждение активного элемента не использовалось.

Данные измерения спектров поглощения, времени затухания люминесценции ионов иттербия и результаты рентгеноструктурного анализа свидетельствуют о высоком оптическом качестве новых эпитаксиальных монокристаллических слоев в сравнении с предыдущими. Новые образцы характеризуются низким уровнем послабления излучения конфигураций планарного оптического волновода – 0,064 дБ/см (ранее было 0,15 дБ/см). Достигнута дифференциальная эффективность генерации 62 %, что выше, чем достигнутая ранее (51 %). Выходные характеристики лазера в режиме непрерывной генерации представлены на рис. 2.

Максимальная мощность лазерного излучения была получена для выходного зеркала с пропусканием 5,0 % и составила 148 мВт при дифференциальной эффективности лазера 62,0 %. Генерация происходила на длине волны 1039 нм. Для зеркала с коэффициентом пропускания 1,0 % порог генерации наблюдался при 40 мВт поглощенной мощности накачки.

Заключение. В результате проведенных исследований представляется возможным целенаправленно изменять динамику кристаллизации и, соответственно, улучшать структурное и оптическое качество монокристаллических слоев, выращиваемых в системе $\text{K}_2\text{W}_2\text{O}_7\text{-}\alpha\text{-KR}(\text{WO}_4)_2$ методом ЖФЭ. Так, численные исследования зависимости между величиной радиального температурного градиента и скоростью конвекции при термогравитационном массопереносе позволяют оптимизировать скорость конвективных потоков за счет изменения режима температур контуров нагрева и охлаждения, обеспечивая тем самым максимально возможную скорость ламинарных конвективных потоков на фронте кристаллизации. Проведенные сравнительные исследования спектральных и генерационных характеристик подтвердили высокое качество монокристаллических структур, полученных с использованием предложенных моделей управле-

ния кристаллизационными процессами. В частности, показано, что эпитаксиальные монокристаллические слои Yb:KYW, выращенные на подложке KYW, характеризуются высоким оптическим качеством и могут использоваться для получения эффективной лазерной генерации на длинах волн вблизи 1,03 мкм.

Литература

1. *Pelenc D., Chambaz B., Chatterier I. et al. // Optics Communications. 1995. Vol. 115. P. 491–497.*
2. *Shimokozono M., Sugimoto N., Tate A. et al. // Appl. Phys. Lett. 1996. Vol. 68. P. 2177–2179.*
3. *Taira T., Tuloch W. M., Byer R. L. // Appl. Opt. 1997. Vol. 36. P. 1867–1874.*
4. *Krupke W. F. // IEEE J. of Select. Topics in Quantum Electron. 2000. Vol. 6. P. 1287.*
5. *Mackenzie J. I. // IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 2007. Vol. 13. P. 626.*
6. *Ostrach S. The influence of hydrodynamics on the crystal growth. The Freeman lecture // Theoretical foundations. 1983. Vol. 105, N 1.*
7. *Guretskij S. A., Luginets A. M., Kolesova I. M. et al. // Laser Optics 2010: 14th Intern. Conf. St.-Petersburg, 2010.*
8. *Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Теоретическая физика. М., 2003. Т. 6: Гидродинамика.*
9. *Самарский А. А. Теория разностных схем. М., 1989.*
10. *Romanyuk Y. E., Borca C. N., Pollnau M. et al. // Opt. Lett. Vol. 31. P. 53–55.6.*

*S. A. GURETSKII, A. M. LUGINETS, I. M. KOLESOVA, A. V. KRAVTSOV, N. V. KULESHOV, S. V. KURILCHIK,
V. E. KISEL, V. B. MALYUTIN, A. A. ERMOLAEV, S. A. KARPENKO*

CHARACTERISTIC FEATURES OF THE GROWTH OF THIN-FILM SINGLE-CRYSTAL STRUCTURES BASED ON DOUBLE TUNGSTATES

Summary

It has been determined that based on the research carried out it is possible to purposefully change the crystallization dynamics of magnetic films grown in the $K_2W_2O_7$ - α - $KGd(WO_4)_2$ system by means of the liquid-phase epitaxy method. Correspondingly it is possible to improve the structural and optical quality of the films. In this way, the restructuring or the restructuring of liquid-crystal “final nucleation centers” is carried out by the impulse change of a solution-melt temperature at the magnetic film synthesis. In this way, a considerable influence on the growth rate of the films is rendered. Moreover, numerical investigations of the dependence of the temperature gradient magnitude on the convection rate in thermogravitational mass transfer make it possible to select the mode of change in the cooling circuit temperature and the temperature of thermal chamber heating elements that provide an optimal velocity of laminar convective streams.

The comparative studies of spectral and generation characteristics have confirmed a high quality of single-crystal structures obtained with the use of the suggested model for control of crystallization processes. Particularly it is shown that Yb:KYW epitaxial single-crystal layers grown on the KYW substrate are characterized by a high optical quality and can be used for obtaining the effective laser generation at the wave lengths of about 1.03 μ m.