

提拉法生长 6 英寸铌酸锂晶体的热场分析

孙 军^{1,2}, 郝永鑫^{2,3}, 刘子琦², 杨金凤¹, 秦 娟⁴, 许京军²

(1. 中国科学院新疆理化技术研究所晶体材料研究中心, 乌鲁木齐 830011; 2. 南开大学物理科学学院, 天津 300071;
3. 厦门钨业股份有限公司, 福建 厦门 361004; 4. 杭州光学精密机械研究所, 杭州 311400)

摘 要: 铌酸锂晶体是一种具有压电效应、非线性光学效应、双折射效应等性能的多功能晶体, 其物理化学性质稳定, 易掺杂调控, 易于制备高质量的光波导, 在集成光学领域具有较大应用潜力。然而, 大尺寸铌酸锂晶体生长由于其热导率低, 晶体内结晶潜热的运输速度和结晶界面上结晶潜热的释放速度不匹配, 导致热量在固液界面累积, 易引发晶体偏心生长和界面回熔。针对 6 英寸晶体等径后期偏心生长的问题, 本工作从提高坩埚相对感应线圈位置和减弱上保温 2 个角度优化热场并开展实验, 结果表明适当提高坩埚相对感应线圈位置和减弱上保温能够增大等径后期熔体表面径向温度梯度, 改善晶体偏心生长情况。此外, 大尺寸晶体生长各阶段对热场需求之间的矛盾加剧。为此, 还开发了动态热场提拉法晶体生长技术, 在固定热场中引入后加热器, 通过调节中频电源和后加热器的功率, 实现了晶体生长过程中温度梯度的实时调节, 从而兼容不同阶段晶体生长的需求, 显著改善了 6 英寸铌酸锂晶体的偏心生长情况, 使晶体的等径长度从 70 mm 增加至 90 mm。

关键词: 晶体生长; 铌酸锂晶体; 动态热场; 温度梯度; 偏心生长

中图分类号: O782 **文献标志码:** A **文章编号:** 0454-5648(2025)12-3468-08

网络出版时间: 2025-10-16



铌酸锂(LiNbO_3 , LN)晶体是一种综合性能优越的晶体, 一方面具有实用化的压电效应、电光效应、非线性光学效应、光折变效应、双折射效应等多种性能^[1-5]; 另一方面其独特的晶格结构和丰富的缺陷结构导致铌酸锂晶体的性能可调控性强, 晶体组分、掺杂及元素的价态等对晶体性能影响非常大^[6]。同时, LN 晶体易于制备高质量的光波导, 几乎可以在一个晶圆上制备出全部的常用光子学器件, 被誉为“光学硅”^[7-8], 在集成光学及光波导器件等领域逐步得到广泛应用。

目前, 大尺寸固液同成分共熔配比 LN(CLN)晶体的制备主要采用提拉法。1964 年, Ballman^[9]首次采用感应加热提拉法制备了 1 英寸的 CLN 晶体, 晶体尺寸已达到实用化水平。此后, 随着 CLN 晶体逐步进入商业化生产阶段, 晶体下游各种器件技术得到发展, 对晶体尺寸的要求越来越大。2022 年, 日本山寿陶瓷开始小批量生产 SAW 滤波器用 8 英寸 CLN 晶体^[10]。2025 年, 山东恒元半导体科技有限公司全球首先突破了 12 英寸光学级铌酸锂晶体生长技术^[11], 但晶体长度非常短, 尚不具备批量应用条件。

大尺寸铌酸锂晶体生长并不容易, 存在较多问题亟待解决。首先, 随着晶体生长尺寸的增大, 结晶界面上结晶潜热的运输受到的影响增强。CLN 晶体热导率较低, 在晶体生长过程中, 随着晶体直径不断增大, 在拉速不变的情况下, 单位时间内需要释放的结晶潜热不断增加, 晶体内热量的运输速度和结晶界面上结晶潜热的释放速度不匹配, 导致热量在固液界面累积, 固液界面变凹^[12], 晶体无法顺利生长。其次, 大尺寸晶体生长需要的坩埚较大, 导致熔体表面径向温度梯度较小, 冷心尺寸过大, 导致引晶困难和晶体扩肩难以控制, 晶体结晶质量不高。最后, 在固定热场下随着晶体生长尺寸的增加, 晶体生长不同阶段对热场需求之间的矛盾也更加显著。大尺寸晶体生长时为顺利引晶和有效控制扩肩速度, 需要增大熔体表面径向温度梯度, 但晶体尺寸越大, 其能承受的温度梯度越小, 过大的温度梯度容易导致晶体内热应力增大, 从而引发晶体开裂。

本工作首先在固定热场下开展了 6 英寸 CLN 晶体的提拉法生长研究。根据 CLN 晶体的生长需求, 设

收稿日期: 2025-07-11。 修订日期: 2025-07-30。

基金项目: 新疆维吾尔自治区自然科学基金(2024D01D28, 2024D01A139)。

第一作者: 孙 军(1976—), 男, 博士, 研究员。

Received date: 2025-07-11. Revised date: 2025-07-30.

First author: SUN Jun (1976—), male, Ph.D., Professor.

E-mail: sj@ms.xjb.ac.cn

计了初步的 6 英寸热场, 分析了晶体偏心生长的原因, 探讨了坩埚相对感应线圈的位置对晶体偏心生长的影响, 并对热场进行优化, 从而揭示了固定热场的局限性。针对晶体生长各阶段热场需求的矛盾, 开发了动态热场提拉法晶体生长技术, 分析了主动加热对晶体生长各阶段温度梯度的影响, 为大尺寸晶体生长提供新的解决思路。

1 实验

1.1 原料制备

生长 CLN 单晶的原料为高温固相烧结法合成的多晶料。将 Li_2CO_3 (新疆有色金属研究所, 纯度 99.99%) 和 Nb_2O_5 (九江有色金属冶炼有限公司, 纯度 99.99%) 按照固液同成分一致熔融摩尔比 $n(\text{Li}):n(\text{Nb})=48.6:51.4$ 混合均匀后置于马弗炉内进行高温烧结。烧结程序如下:

180 min 300 min 420 min
30℃ → 800℃ → 1100℃ → 1100℃

固相烧结主要涉及 2 个化学反应过程。一是当温度升至 800℃ 时, Li_2CO_3 发生分解; 二是在 1100℃ 条件下, 反应生成的 Li_2O 和 Nb_2O_5 发生固相反应, 生成 CLN 多晶料。

1.2 热场设计

1.2.1 固定热场的设计 6 英寸光学级 CLN 晶体生长的热场设计分为上下 2 部分, 下部热场提供基础保温, 上部热场为结晶潜热的输运提供合适的温度梯度^[13], 具体设计如图 1 所示。下部热场选用导热系数较低的氧化铝纤维砖作为外保温材料, 外套石英筒起固定支撑作用, 坩埚底部使用氧化铝空心砖作为支撑, 其余部分用氧化铝空心球进行填充; 上部热场采用导热系数较高的氧化铝空心砖作为外保温, 侧部安装铂金反射屏并用氧化铝陶瓷进行固定。

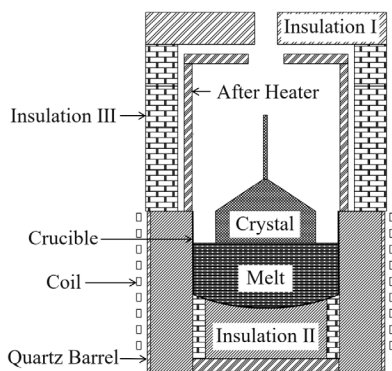


图 1 6 英寸光学级 CLN 晶体生长的固定热场示意图
Fig. 1 Schematic diagram of a fixed thermal field for 6-inch optical-grade CLN crystal growth

1.2.2 动态热场的设计 后加热器是动态热场的核心组成部分, 其目的在于通过后加热器改变上部热场的保温性能, 进而主动调节热场的热损耗, 实时调控晶体生长在不同阶段所需的温度梯度。后加热器的设计及控制分为以下 2 个方面:

1) 加热元件的设计。

后加热器可选择多种加热方式, 本工作采用铂金丝作为加热丝的电阻加热。一方面, 采用电阻加热, 避免了两者的电磁干扰, 确保功率的稳定调节; 另一方面, 加热丝的工作温度需高于晶体的熔点, 具有较高的稳定性且不能与保温材料、熔体和气氛发生反应, 避免对晶体造成污染。

此外, 为了保证结晶潜热的有效输运, 晶体上部即上部热场下端需具有良好的散热能力。考虑需实现对晶体温度梯度进行快速调节, 将后加热器放置在上部内热场上端(如图 2 框线区域所示)。

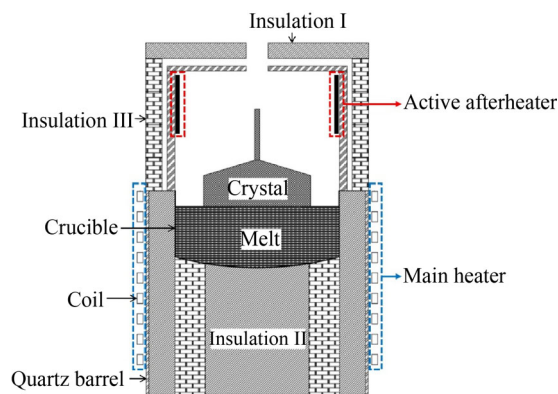


图 2 6 英寸光学级 CLN 晶体生长的动态热场示意图
Fig. 2 Schematic diagram of a dynamic thermal field for 6-inch optical-grade CLN crystal growth

2) 加热器功率调节。

后加热器的功率调节是通过调节电阻丝两端的电压来实现的。在整个晶体生长过程中, 通过控制主加热器(中频电源)和后加热器的功率, 实现在不同生长阶段温度梯度的调节。

引晶前, 在原优化后的固定热场基础上, 适当减弱上保温。在引晶时, 通过后加热器的功率补偿增加的热损耗, 甚至适当增加后加热器的功率以降低坩埚的发热量。在扩肩时, 保持后加热器功率不变, 通过调节主加热器功率控制晶体生长, 以进一步降低坩埚壁的发热量, 为等径生长期间维持较高的熔体表面径向温度梯度提供基础。在等径生长时, 维持主加热器加热功率不变, 逐步降低后加热器功率, 提高晶体温度梯度, 为结晶潜热的输运提供稳定的驱动力。在降温时, 根据热电偶反馈的温度变化, 实时调节后加热器功率, 维持晶体温度较小的

温度梯度，避免晶体开裂。

1.3 晶体生长过程

本工作使用的提拉炉为自主研发设备。提拉法晶体生长的过程主要包括装炉、升温熔料、下种引晶、缩颈、扩肩、等径生长、收尾拉脱和降温^[14]。

首先将热场、坩埚、籽晶杆调至同轴状态，随后将固相烧结的 CLN 多晶料装入坩埚，升温熔化。待原料完全熔化后，调节至合适的加热功率并维持一段时间。在温场稳定后，缓慢下降籽晶，将籽晶浸入熔体中，若籽晶在一段时间内保持不熔不长的状态，即完成引晶。随后适当增加功率或提拉速度，使籽晶直径适当缩小，减小晶体中的缺陷密度，避免缺陷延伸。随后通过控制加热功率，将晶体直径均匀扩大到预设直径，并维持该直径继续生长。在等径生长结束后，逐步升高加热功率或加快籽晶杆的提拉速度，使晶体直径逐渐缩小，直至晶体与熔体脱离，完成晶体生长收尾。晶体拉脱后，需逐渐降低温度至室温取出晶体。

2 结果与讨论

2.1 固定热场晶体生长结果与分析

2.1.1 晶体的偏心生长 6 英寸 CLN 晶体在固定

热场下共进行了 6 次实验，每次实验的提拉速度均为 1.5 mm/h，所得晶体编号依次为样品 CLN-6Z-1~样品 CLN-6Z-6。不同的热场条件及生长工艺见表 1。

图 3 为固定热场下不同工艺生长的 6 英寸晶体。在第 1 次生长实验中，使用了铂金反射屏，并将其坩埚相对感应线圈的位置作为基准(记为 $H=0$ mm)，所得晶体如图 3a 所示，等径长度约 15 mm 后出现了偏心生长现象；随后在第 1 次实验的基础上，依次提高坩埚相对感应线圈的位置至 10 mm 和 20 mm，所得晶体等径长度有所增加，分别为 35 mm 和 50 mm，如图 3b 和图 3c 所示；第 4 次实验继续提高坩埚相对感应线圈的位置至 30 mm，该晶体从扩肩结束后即开始偏心生长，如图 3d 所示；第 5 次实验是在第 3 次实验的基础上，撤去了铂金反射屏，只留下支撑反射屏的氧化铝硬质陶瓷作为内保温，减少了铂金反射屏的感应发热和对热量的反射，达到减弱上保温的目的，所得晶体如图 3e 所示，晶体等径长度增加至 70 mm 后开始出现偏心生长的趋势；第 6 次实验再次减弱上保温，即将上部外保温罩的厚度减薄，外径减小 10 mm，其它的生长条件保持不变，所得的晶体等径长度与第 5 次实验基本相同，如图 3f 所示。

表 1 固定热场生长 6 英寸 CLN 晶体的工艺及结果

Table 1 Process and results of growing 6-inch CLN crystals using a fixed thermal field

Crystal number	Experiment number	Crystal axes	Position of the crucible relative to the induction coil H /mm	With/without an after heater	Rotation $R/(r \cdot \min^{-1})$	Constant-diameter length L /mm
Sample CLN-6Z-1	1	Z	0	With	3	15
Sample CLN-6Z-2	2	Z	10	With	3	35
Sample CLN-6Z-3	3	Z	20	With	2	50
Sample CLN-6Z-4	4	Z	30	With	2	0
Sample CLN-6Z-5	5	Z	20	Without	2	70
Sample CLN-6Z-6	6	Z	20	Without	2	70

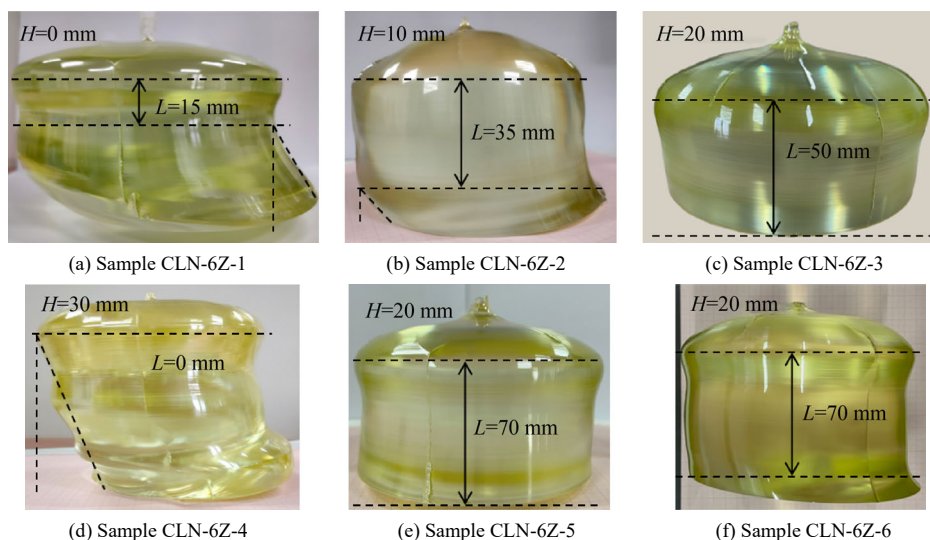


图 3 固定热场下不同工艺生长的 6 英寸晶体

Fig. 3 6-inch crystals grown with different processes in fixed thermal field

2.1.2 晶体偏心生长分析 晶体偏心生长的机制目前还没有统一的定论。在排除由热场不对称导致的影响后, 偏心生长的成因主要有 3 种: ①由表面张力过大引起的对流不对称性^[15]; ②固液界面附近熔体的径向温度梯度过小^[16]; ③熔体表面组分的不均匀性引起表面张力梯度变化, 使得马兰戈尼对流不稳定, 破坏温场对称性^[17]。

Kochurikhin 等^[15]在生长 DGG 晶体时分析认为是 DGG 熔体具有较大表面张力, 促进马兰戈尼对流, 导致固液界面失稳, 造成晶体螺旋生长。孟猛等^[17]在生长 GAGG:Ce 晶体时分析认为, 熔体中 Ga_2O_3 挥发导致熔体表面组分不均匀, 引起表面张力梯度发生变化, 液流不稳定进而导致晶体偏心生长。Anzai 等^[18]测量发现铌酸锂熔体的黏度(1260 °C 时黏度为 38 mPa·s)不大, 同成分铌酸锂晶体生长时熔体挥发很小, 铌酸锂晶体的偏心生长应从其它因素考虑。

因此, 分析认为, CLN 晶体的偏心生长是由等径生长后期固液界面附近熔体的径向温度梯度过小造成的。在实际晶体生长过程中, 随着等径长度的增加, 液面逐渐下降, 坩埚壁的裸露效应逐渐显露, 从而使熔体表面的径向温度梯度越来越小。晶体受到坩埚壁的辐射作用也越来越强, 当结晶潜热无法从晶体中有效输运导致热量累积时, 界面会随机产生凸起直接向上辐射热量^[19]。由于此时熔体表面的径向温度梯度较小, 凸起一旦产生, 凸起部分晶体与未凸出的晶体相比, 同等截面积散热更快, 所对应的生长界面结晶潜热输运速度更快, 晶体生长速度增大, 导致晶体直径越来越大。等径生长期间为了维持直径不变, 需要升高熔体整体温度, 导致晶体固液界面处远离凸起的部分发生回熔, 从而造成偏心生长。

2.1.3 坩埚位置对晶体偏心生长的影响 感应加热中坩埚是发热体, 调节坩埚和线圈的相对位置将改变熔体中的温度分布和对流情况。坩埚初始位置处于感应线圈中上部, 提高坩埚相对感应线圈的位置后, 坩埚下半部分的耦合效率变化不大, 上半部分耦合效率降低, 坩埚整体耦合效率下降。热场整体散热功率保持不变, 为保证晶体顺利生长, 冷心处温度应保持不变, 即熔体热量不变, 因此, 需要提高中频电源功率。靠近感应线圈上部位置, 向上移动时磁力线密度快速变小, 而靠近感应线圈中部位置向上移动, 磁力线密度变化较小。因此坩埚向上移动时, 坩埚壁下部的耦合效率变化不大, 上部

的耦合效率明显变小, 提高中频电源功率时, 坩埚下部发热量增大, 而总发热量需要与散热功率保持一致, 上部的发热量必须减少。当晶体处于等径生长后期阶段, 坩埚裸露部分显著, 与提高坩埚相对感应线圈的位置前相比, 坩埚壁发热减少, 对晶体和熔体表面的辐射作用减弱, 进而使得固液界面附近的径向温度梯度增大。

对比实验 1~实验 3 可以看出, 提高坩埚相对感应线圈的位置对于偏心生长能起到明显的改善作用, 等径长度从 15 mm 增加至 50 mm。但将坩埚相对感应线圈的位置继续提高至 30 mm 时, 晶体从扩肩结束就开始偏心生长, 这是因为坩埚相对感应线圈位置提升过多时, 坩埚下半部分的耦合效率开始降低, 固液界面附近温度梯度不增反减, 熔体中的对流情况发生突变, 导致晶体偏心生长。

2.1.4 晶体生长热场的优化 在确保籽晶、坩埚和热场同轴的状态下, 为解决晶体等径生长后期偏心生长的问题, 在固定热场下有以下几种解决方案:

1) 降低坩埚壁的辐射作用。

等径生长后期熔体液面下降明显, 裸露的坩埚壁作为发热体, 改变了晶体表面和熔体自由表面的辐射损耗, 这一段晶体无法通过辐射将热量由晶体表面耗散出去^[20]。通过增强下保温可以降低坩埚的发热量, 进而减少坩埚裸露对晶体和熔体表面的辐射作用, 从而避免晶体和熔体表面径向温度梯度减小。

2) 减少坩埚壁裸露部分。

增大坩埚直径或采用连续加料的方法可以维持液面高度, 减少坩埚壁的裸露部分对晶体和熔体表面的辐射作用。但坩埚直径的增大会使得熔体表面的径向温度梯度更小, 与增大径向温度梯度的目的相悖。

3) 增强上部热场散热。

通过对晶体偏心生长原因的分析, 认为当结晶潜热无法从晶体中有效输运导致热量在固液界面累积时, 界面会产生随机凸起直接向上辐射热量。通过增强上部热场的散热, 增大晶体内的温度梯度, 保证结晶潜热能从晶体中输运出去, 从而改善晶体偏心生长情况。

在 6 英寸 CLN 晶体生长中, 先通过提高坩埚相对感应线圈的位置增大等径生长后期熔体表面的径向温度梯度, 晶体偏心生长情况明显改善。在坩埚相对感应线圈位置提到临界值后, 通过减弱上保温能继续改善偏心生长现象, 即在样品 CLN-6Z-3 基础上减弱上保温, 样品 CLN-6Z-5 的等径长度达 70 mm,

但再次减弱上保温, 晶体等径长度达 70 mm 后依旧出现偏心生长现象, 这是因为上保温减弱过多, 热场整体热损耗增大, 加热功率上升, 坩埚发热量增大导致坩埚裸露效应进一步增强, 从而导致固液界面处径向温度梯度较小, 引起晶体偏心生长。

2.1.5 固定热场设计优化存在的局限性 随着晶体尺寸的增加, 固定热场中晶体生长各阶段对温度梯度需求之间的矛盾越加明显。例如, 如果在引晶和扩肩阶段固液界面的温度梯度合适, 随着晶体长度的增加, 坩埚裸露效应显露, 等径生长后期固液界面温度梯度减小, 进而引起晶体偏心生长或界面回熔; 反之, 为保证等径后期具有合适的温度梯度, 则引晶和扩肩阶段的温度梯度可能偏大, 容易导致多晶等问题, 且降温期间较大的温度梯度容易导致晶体内部热应力过大引起开裂。

传统固定热场只能满足某一阶段晶体生长的需求, 对于该 6 英寸 CLN 晶体, 通过优化上下热场结构和调整坩埚相对感应线圈位置, 能明显改善晶体偏心生长的情况, 显著增加晶体等径长度, 但是达到某一临界值后继续对热场进行优化, 无法再增加晶体等径长度。因此, 需要新的热场优化策略满足大尺寸晶体生长需求。

2.2 动态热场钕酸锂晶体生长结果与分析

2.2.1 主动加热对晶体生长温度梯度的影响 在提拉法晶体生长过程中, 以固液界面为研究对象, 固液界面产生的热量包含坩埚附近的高温熔体通过热传导和热对流带来的热量和熔体结晶时释放的相变潜热, 热损耗为通过晶体界面散失的热量。从热平衡角度进行分析, 认为晶体等径阶段固液界面处于稳态, 即单位时间内产生的热量等于热损耗。

在晶体等径生长阶段, 单位时间内熔体结晶释放的结晶潜热为一定值, 可知中频电源加热功率的改变是为了补偿热场整体热损耗的变化, 其中, 热损耗主要包含从晶体中散出的热量、坩埚壁向外散出的热量和熔体液面向外散出的热量。在固定热场中, 热损耗的改变是由熔体液面下降导致坩埚裸露和晶体长度增加引起的, 无法主动对其进行调节。而动态热场的热损耗等于上述 3 部分热损耗与后加

热器产生的热量之和。因此, 通过改变中频电源的加热功率和后加热器的功率均可补偿系统热损耗的变化, 能够实现晶体生长各阶段不同热场需求的调节。

在引晶阶段, 动态热场通过灵活调整主加热器和后加热器之间的功率分配, 从而控制熔体表面的径向温度梯度, 达到控制液面冷心大小的目的。在等径生长阶段, 动态热场通过调节后加热器的功率, 增大或减小晶体中的温度梯度, 确保固液界面附近的温度梯度保持稳定, 维持晶体生长的驱动力。在降温阶段, 动态热场通过调整上部热场的温度, 能够减小晶体内部的温度梯度, 避免晶体因热应力过大导致开裂。

2.2.2 动态热场晶体生长结果 在样品 CLN-6Z-6 的固定热场基础上, 分别进行了 3 次实验, 每次实验的提拉速度均为 1.5 mm/h, 所得晶体分别编号为样品 CLN-6Z-7、样品 CLN-6Z-8 和样品 CLN-6Z-9。3 次实验中主加热器和后加热器的功率变化情况见表 2。

第 1 次实验将样品 CLN-6Z-6 的固定热场上部外保温罩厚度继续减薄, 内径增大 10 mm, 其余保温材料不变, 然后使用后加热器补偿减弱的部分, 以确保引晶顺利进行。扩肩阶段, 后加热功率维持不变, 通过降低主加热器加热功率, 为固液界面提供较为稳定的温度梯度。在等径生长期间, 主加热器功率维持不变, 逐步降低后加热器加热功率调整系统热损耗, 增大晶体内部温度梯度, 为结晶潜热运输提供驱动力。在降温阶段, 主加热器功率逐步降低, 通过实时调节后加热器功率, 确保晶体上下温差保持在较小值, 以避免晶体内部温度梯度过大引发开裂。所得晶体如图 4b 所示, 等径长度达 80 mm, 说明动态热场增大等径生长后期固液界面径向温度梯度初有成效。

第 2 次实验是在第 1 次实验的基础上, 继续减薄上部热保温罩, 内径继续增大 10 mm, 进一步减弱上部热场外保温性能。与第 1 次实验相同, 后加热器在引晶时补偿增加的热损耗。所得晶体如图 4c 所示, 等径长度增加至 90 mm。

表 2 动态热场生长 6 英寸 CLN 晶体时主加热器和后加热器的功率变化

Growth stage	P_CLN-6Z-7	A_CLN-6Z-7	P_CLN-6Z-8	A_CLN-6Z-8	P_CLN-6Z-9	A_CLN-6Z-9
Completion of seeding stage	4000	180	4500	340	3500	810
Completion of shouldering stage	3855	180	4290	340	3365	810
Completion of constant diameter stage	3855	90	4290	214	3365	720

Thermal field for sample CLN-6Z-7 was modified from sample CLN-6Z-6 by reducing the thickness of its upper outer insulation material. Sample CLN-6Z-8 was further modified through additional thinning of this material, while sample CLN-6Z-9 retained the identical thermal field configuration as sample CLN-6Z-8.

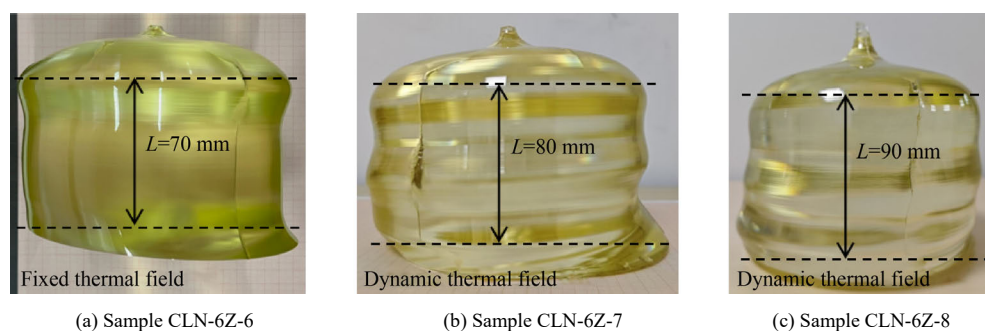


图 4 不同热场下生长的晶体对比

Fig. 4 Comparison of crystals grown in different thermal configurations

为进一步增加晶体的等径长度, 第 3 次实验在不改变热场结构的情况下, 通过提高后加热器功率比例, 减小整体热损耗, 从而减少坩埚壁发热量, 提高晶体等径生长后期熔体表面径向温度梯度。所得晶体如图 5a 所示, 晶体未出现偏心生长。但由于

后加热器功率过高, 在等径后期晶体内部轴向温度梯度过小, 结晶潜热输运受阻, 热量在结晶界面累积导致界面回熔(如图 5b 所示), 生长中断, 晶体等径长度只有 50 mm, 说明动态热场中主加热器和后加热器的功率分配应在合理的范围之内。

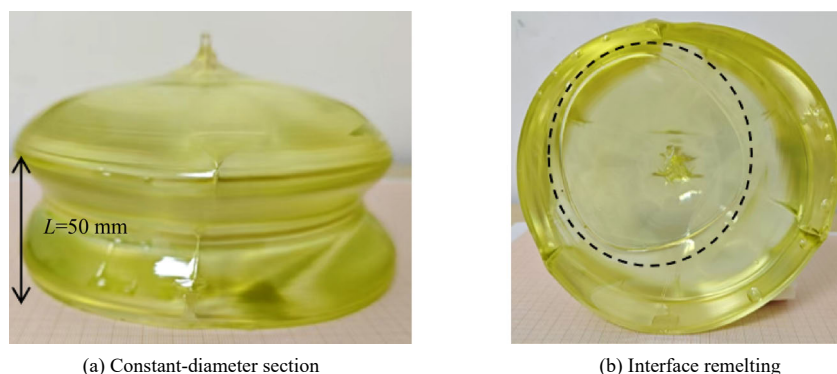


图 5 增加后加热器功率比例生长所得样品 CLN-6Z-9 晶体

Fig. 5 Sample CLN-6Z-9 crystal grown with increased after-heater power ratio

2.2.3 固定热场与动态热场的对比 在晶体生长过程中, 热场设计对晶体质量和生长效率起着决定性作用。动态热场与固定热场在晶体生长过程中各有优缺点, 以下为对比分析:

1) 在温度梯度控制方面, 固定热场的温度梯度完全取决于热场结构的设计, 虽然在晶体生长过程中由于晶体长度的增加以及坩埚壁的裸露, 热场内的温度梯度不是一个定值, 但也无法通过人工进行干预。而动态热场可以通过协同调节主加热器和后加热器的功率, 改变系统中的热损耗, 从而满足晶体生长不同阶段对温度梯度的需求。

2) 在响应时间方面, 固定热场下控制晶体直径, 需要通过改变中频电源加热功率进而改变坩埚的发热量, 之后通过熔体对流引起固液界面温度梯度的改变, 从而改变晶体生长的驱动力, 最终改变晶体直径。但大尺寸晶体生长所需的熔体体积较大, 热容量较高, 调节的响应时间较长, 热滞后明显。采用动态热场控制晶体直径, 通过调节后加热器功

率直接改变炉内热损耗, 进而改变晶体内部和固液界面附近温度梯度, 响应时间显著缩短, 热滞后较小, 直径控制更加灵敏精确。

3) 在成本方面, 与固定热场相比较, 动态热场无需在晶体生长过程中因热场设计不合适导致引晶或扩肩失败而停炉, 可以通过调节中频电源和后加热器功率的比例来解决, 节约了大量时间和经济成本。

3 结论

本工作设计了 6 英寸 CLN 晶体生长的固定热场, 分析了 6 英寸晶体偏心生长的主要原因为等径后期熔体表面径向温度梯度过小, 通过提高坩埚相对感应线圈位置和减弱上保温对热场结构进行了优化, 晶体等径长度从 15 mm 增加至约 70 mm。

针对固定热场设计优化的局限性, 开发了动态热场提拉法晶体生长技术。通过在固定热场中引入后加热器, 实现了晶体生长过程中温度梯度的实时

调节,从而兼容不同阶段晶体生长的需求,显著改善了 6 英寸 CLN 晶体的偏心生长情况,使晶体的等径长度从 70 mm 增加至 90 mm。

该方法对生长更大尺寸铌酸锂乃至其他晶体均具有普适性,通过调节中频电源和后加热器功率,结合被动保温,共同实现晶体生长不同阶段热场的动态调控,满足晶体生长不同阶段热场的需求,生长出大尺寸高质量晶体。这将直接提升晶片产出效率、降低成本、促进大尺寸晶片供应,为薄膜铌酸锂光子集成技术提供坚实的材料基础。

参考文献:

- [1] YAO H L, ZHENG P C, ZHANG S B, et al. Twist piezoelectricity: Giant electromechanical coupling in magic-angle twisted bilayer LiNbO_3 [J]. *Nat Commun*, 2024, 15(1): 5002.
- [2] ZHANG P, HUANG H J, JIANG Y H, et al. High-speed electro-optic modulator based on silicon nitride loaded lithium niobate on an insulator platform[J]. *Opt Lett*, 2021, 46(23): 5986–5989.
- [3] PENG L Z, LIU L Q, LI X N, et al. Efficient simultaneous second harmonic generation and dispersive wave generation in lithium niobate thin film[J]. *Laser Photonics Rev*, 2025, 19(5): 2400335.
- [4] 孔勇发, 许京军, 张光寅, 等. 多功能光电材料: 铌酸锂晶体[M]. 北京: 科学出版社, 2005: 173–201.
- [5] YOU B, YUAN S X, TIAN Y, et al. Lithium niobate on insulator - fundamental opto-electronic properties and photonic device prospects[J]. *Nanophotonics*, 2024, 13(17): 3037–3057.
- [6] 孙军, 郝永鑫, 张玲, 等. 铌酸锂晶体及其应用概述[J]. *人工晶体学报*, 2020, 49(6): 947–964.
SUN Jun, HAO Yongxin, ZHANG Ling, et al. *J Synth Cryst*, 2020, 49(6): 947–964.
- [7] KÖSTERS M, STURMAN B, WERHEIT P, et al. Optical cleaning of congruent lithium niobate crystals[J]. *Nat Photonics*, 2009, 3: 510–513.
- [8] KONG Y F, BO F, WANG W W, et al. Recent progress in lithium niobate: Optical damage, defect simulation, and on-chip devices[J]. *Adv Mater*, 2020, 32(3): e1806452.
- [9] BALLMAN A A. Growth of piezoelectric and ferroelectric materials by the Czochralski technique[J]. *J Am Ceram Soc*, 1965, 48(2): 112–113.
- [10] 日本山寿陶瓷量产 8 吋晶片! 预计明年月产能达 10000 片[EB/OL]. (2022–04–26) [2025–07–10]. https://www.sohu.com/a/540782737_159067.
- [11] 山东好成果|器件生产成本降低 50%以上, 12 英寸铌酸锂晶体开启光电子新时代[EB/OL]. (2025–04–03) [2025–07–10]. http://kjt.shandong.gov.cn/art/2025/4/3/art_333096_10318809.html.
- [12] 孙德辉, 韩文斌, 李陈哲, 等. 8 英寸铌酸锂晶体生长研究[J]. *人工晶体学报*, 2024, 53(3): 434–440.
SUN Dehui, HAN Wenbin, LI Chenzhe, et al. *J Synth Cryst*, 2024, 53(3): 434–440.
- [13] 秦娟. 熔体提拉法晶体生长热场设计的范式及其应用研究[D]. 天津: 南开大学, 2023.
QING Juan. Research on Paradigm of Thermal Field Design for Crystal Growth by Czochralski method and Its Applications[D]. Tianjin: Nankai University, 2023.
- [14] 韩文斌. 集成光学用基质材料 X 轴铌酸锂晶体生长、缺陷及性能研究[D]. 济南: 济南大学, 2024.
HAN Wenbin. Study on growth, defects and properties of X-axis lithium niobate crystal as matrix material for integrated optics[D]. Jinan: University of Jinan, 2024.
- [15] KOCHURIKHIN V V, SHIMAMURA K, FUKUDA T. Investigation of spiral bending of straight Czochralski grown dysprosium gallium aluminium garnet crystals[J]. *J Cryst Growth*, 1996, 160(1/2): 181–183.
- [16] FEI Y T, CHOU M M C, CHAI B H T. Crystal growth and morphology of substituted gadolinium gallium garnet[J]. *J Cryst Growth*, 2002, 240(1/2): 185–189.
- [17] 孟猛, 祁强, 丁栋舟, 等. 新型闪烁晶体 $\text{Gd}_3(\text{Al}, \text{Ga})_5\text{O}_{12}$: Ce^{3+} 的研究进展[J]. *人工晶体学报*, 2019, 48(8): 1386–1394.
MENG Meng, QI Qiang, DING Dongzhou, et al. *J Synth Cryst*, 2019, 48(8): 1386–1394.
- [18] ANZAI Y, KIMURA S, SAWADA T, et al. Measurement of density, viscosity and surface tension of molten lithium niobate[J]. *J Cryst Growth*, 1993, 134(3/4): 227–234.
- [19] 龙勇, 徐扬, 石自彬, 等. TGG 晶体偏心生长研究[J]. *压电与声光*, 2015, 37(2): 277–279.
LONG Yong, XU Yang, SHI Zibin, et al. *Piezoelectrics Acoustooptics*, 2015, 37(2): 277–279.
- [20] 闵乃本. 晶体生长的物理基础[M]. 南京: 南京大学出版社, 2019.

Thermal Field Study for Czochralski Growth of 6-inch Lithium Niobate Crystals

SUN Jun^{1,2}, HAO Yongxin^{2,3}, LIU Ziqi², YANG Jinfeng¹, QIN Juan⁴, XU Jingjun²

(1. Xinjiang Technical Institute of Physics and Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Urumqi 830011, China;

2. School of Physics, Nankai University, Tianjin 300071, China; 3. Xiamen Tungsten Co., Ltd., Xiamen 361004, Fujian, China;

4. Hangzhou Institute of Optics and Fine Mechanics, Gallium oxide crystal Project Department, Hangzhou 311400, China)

Extended Abstract

Introduction Lithium niobate crystal exhibits versatile properties including piezoelectric, nonlinear and birefringence. Its stable physicochemical characteristics, doping amenability, and suitability for high-quality optical waveguide fabrication make it promising for integrated optics. However, the growth of large-size lithium niobate crystals presents significant challenges, with several critical issues remaining unresolved. Firstly, its low thermal conductivity causes a heat accumulation at the crystal-melt interface due to mismatched latent heat transport and release rates. This leads to eccentric growth and interface remelting. Secondly, the large crucible

required for large-size crystal growth results in a reduced radial temperature gradient across the melt surface and an oversized cold core, which complicates necking initiation and shouldering control, ultimately compromising crystallinity. Finally, fixed thermal field configurations fail to accommodate divergent thermal requirements across different growth stages as crystal size increases. In this study, the fixed thermal field configuration and methodologies for mitigating eccentric crystal growth were investigated. In addition, the impact of dynamic thermal fields on stage-specific thermal requirements during crystal growth was also analyzed.

Methods This work conducted the Czochralski growth of 6 in CLN (congruent lithium niobate) crystals in a fixed thermal field. A preliminary 6 in thermal field was firstly designed according to the CLN crystal growth requirements, and then by root-cause analysis of eccentric growth and thermal field optimization. The crucible position relative to the induction coil was gradually elevated, while maintaining identical growth parameters. Subsequently, comparative experiments of fixed crucible position and constant process conditions with the diminished upper insulation assessed their impact on the eccentric growth. To resolve conflicting thermal requirements across growth stages, a dynamic thermal field Czochralski technique was developed *via* integrating an active afterheater. This enabled real-time regulation of the temperature gradient by adjusting power to the main heater and active afterheater. Comparative analysis of the constant-diameter lengths in grown crystals could demonstrate the efficacy of the dynamic thermal field technique.

Results and discussion In a fixed thermal field, the causes of eccentric growth during the late constant-diameter growth stage are analyzed. During the actual crystal growth, the melt level progressively decreases as the constant-diameter length increases, gradually revealing an exposed crucible wall effect. This reduces the radial temperature gradient across the melt surface. Simultaneously, a radiative influence from the crucible wall appears on the crystal intensifies. When crystallization latent heat cannot be efficiently transported from the crystal, a heat accumulation occurs, triggering random protrusions at the solid–liquid interface that radiate heat directly upward, resulting in eccentric growth. Thermal field optimization is achieved *via* elevating the crucible position relative to the induction coil and reducing upper insulation. Consequently, the constant-diameter length increases from 15 mm to approximately 70 mm, effectively mitigating an eccentric growth.

The development of a dynamic thermal field crystal growth technique, enabled by the introduction of an active afterheater, demonstrates critical advantages over conventional fixed thermal fields, *i.e.*, 1) Fixed thermal fields exhibit temperature gradients solely determined by structural design, precluding manual intervention during growth. Conversely, dynamic thermal fields facilitate different temperature gradient control in different stages through coordinated power modulation of the primary and secondary heaters, thereby altering system heat dissipation, 2) Large-size crystal growth requires substantial melt volumes with a high thermal mass, resulting in prolonged adjustment response time and significant thermal hysteresis. The dynamic approach achieves a superior diameter control *via* directly manipulating furnace heat dissipation by an active afterheater power. This rapidly modifies temperature gradients within the crystal bulk and near the solid–liquid interface, reducing hysteresis and enabling diameter precision, and 3) Unlike fixed configurations necessitating furnace shutdowns due to thermal design failures, dynamic systems resolve thermal incompatibilities control through power adjustments to the MF (Medium-Frequency) Power Supply and active afterheater. This eliminates costly interruptions, saving both time and cost.

Conclusions This work designed a fixed thermal field for 6 in CLN crystal growth. The analysis revealed that the primary cause of eccentric growth in 6 in CLN crystal was an insufficient radial temperature gradient across the melt surface during the late constant-diameter growth stage. The thermal field optimization was achieved *via* elevating the crucible position relative to the induction coil and reducing upper insulation, extending the constant-diameter length from 15 mm to approximately 70 mm.

To address limitations in fixed thermal field optimization, a dynamic thermal field Czochralski technique was developed, which enabled real-time regulation of temperature gradients during crystal growth. This approach could accommodate divergent thermal requirements across different growth stages, significantly mitigating an eccentric growth in 6 in CLN crystal and further increasing the constant-diameter length from 70 mm to 90 mm, thus establishing a novel paradigm for large-sizer crystal growth.

Keywords crystal growth; lithium niobate crystal; dynamic thermal field; temperature gradient; eccentric growth