

# 温度梯度法生长 Nd:YAG 激光晶体的核心分布\*

姜本学<sup>1)2)</sup> 徐 军<sup>1)†</sup> 李红军<sup>1)</sup> 王静雅<sup>1)</sup> 赵广军<sup>1)</sup> 赵志伟<sup>1)</sup>

1) 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

2) 中国科学院研究生院, 北京 100049)

(2005 年 12 月 31 日收到, 2006 年 9 月 17 日收到修改稿)

用温度梯度法生长了直径为 75 mm 大尺寸的 Nd:YAG 激光晶体, 通过退火排除了生长过程中进入晶体的碳原子. 用正交偏光显微镜观察了晶体的核心分布以及生长条纹. 测试了室温下的吸收谱并利用吸收谱研究了 Nd 离子在 YAG 晶体中的分布. 比较了温度梯度法与提拉法生长晶体的区别.

关键词: 材料, 缺陷, 温度梯度法, Nd:YAG

PACC: 6150E, 8110F

## 1. 引 言

高平均功率(HAP)输出的固体激光器(SSL)在工业、科学和军事等领域都有着非常诱人的应用前景<sup>[1-6]</sup>. 设计高平均功率固体激光器的主要的挑战有两个: 如何获得大尺寸高质量激光晶体以及对抽运过程中产生的无法避免的废热进行处理. 其中大尺寸高质量激光晶体的获得是一个非常重要的发展方向.

根据盘片的热应力极限, 可以计算出当激光输出为连续或者准连续时, 四能级的粒子的可提取能量为<sup>[5]</sup>

$$P_{\text{avail avg max}} = (\pi/4)(3\Re b\eta_u I_{\text{sat}} \psi_d \phi d^3 f_h^{-1} B^{-1})^2, \quad (1)$$

式中  $\Re$  为抗热振参数,  $b$  为安全因子(设计的张应力与断裂应力之比, 一般取 0.25—0.5),  $\eta_u$  为增益介质的上能级效率,  $I_{\text{sat}}$  为饱和增益强度,  $\psi_d$  为占空比,  $\phi$  为 ASE 参数,  $d$  为增益介质的直径,  $f_h$  为热分数, 对于四能级系统  $B = 1$ . 从(1)式中可以看出, 盘片激光的最大可提取能量与盘片直径的 1.5 次方成正比. 用  $N = 4$ ,  $d = 5 \text{ cm}$ ,  $L = 0.25 \text{ cm}$ , 计算出的  $P_{\text{avail avg max}}$  列入表 1 中<sup>[5]</sup>. 在相同的抽运条件下, 相同的晶体尺寸下, Nd:YAG 晶体的输出功率比 Nd:GGG 晶体大约高 1/3.

表 1 两种抽运条件下 Nd:YAG 和 Nd:GGG 晶体的

可提取能量  $P_{\text{avail avg max}}$

晶体	可提取能量 $P_{\text{avail avg max}}$	
	808 nm 抽运下的 $P_{\text{avail avg max}}/\text{kW}$	885 nm 抽运下的 $P_{\text{avail avg max}}/\text{kW}$
Nd:YAG	32	62
Nd:GGG	26	48

由于传统的提拉法(Cz)无法生长大尺寸无核心 Nd:YAG 晶体, 所以国内外将研究的重点放在了 Nd:GGG 晶体上. 近年来, 大尺寸 Nd:GGG 激光晶体的出现, 使得高平均功率固体激光器得到长足的发展. 但是我们知道, Nd:YAG 晶体的热导率, 吸收截面、发射截面都较 Nd:GGG 大, 同时 Nd:YAG 晶体在生长过程中不存在组分挥发问题, 晶体的缺陷较少. 所以用新工艺生长大尺寸高质量 Nd:YAG 激光晶体的研究具有重要的战略意义和社会价值.

本文我们用温度梯度法(TGT)生长了  $\phi 75 \text{ mm}$  的 Nd:YAG 晶体, 研究了核心分布并与 Cz 生长晶体进行了比较.

## 2. 实 验

### 2.1. Cz 与 TGT 生长晶体

Cz 的创始人是 Czochralski, 这是熔体生长最常用的方法之一. 首先将合成的原料装入铈坩埚中, 在坩埚的上方有一根可以旋转和升降的提拉杆, 杆

† 通讯联系人. E-mail: xujun@mail.shcnc.ac.cn

的下端带有一个夹头,其上装有籽晶,整个生长装置安放在一个密封腔内,往腔内充入高纯氩气(Ar)或氮气(N<sub>2</sub>)作为生长气氛,采用中频感应加热,晶体的直径由称重法控制.该方法的主要优点是可以方便地观察到晶体的生长形状.

TGT也是属于从熔体中生长单晶体的一种方法,是中科院上海光机所的专利技术.TGT和Cz的结晶原理相似,也是靠固液界面处形成的过冷度,即在固液界面处具有合适的温度梯度.TGT生长晶体的温度梯度主要是靠石墨发热体、坩埚、以及保温装置的几何特点决定的,同时功率控制和循环冷却水也是影响TGT炉内温场的重要因素<sup>[7]</sup>.

在TGT法生长晶体的过程中,坩埚、晶体和加

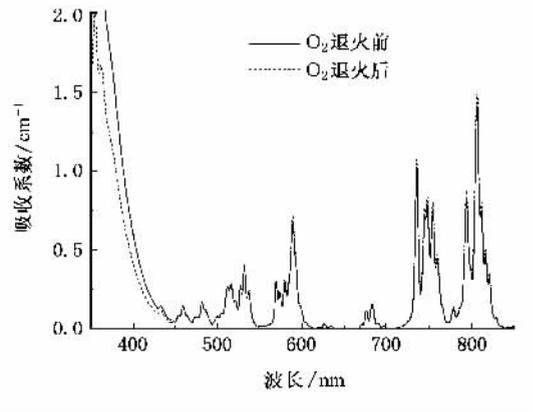
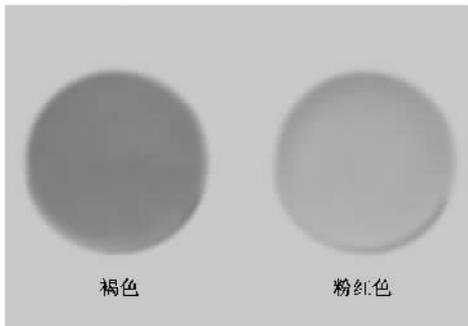


图1 退火前后晶片颜色及吸收谱的改变

## 2.2. 样品加工

样品分别取自TGT和Cz生长的Nd:YAG晶体,分别沿平行和垂直于111方向,经过切割、粗磨、细磨和双面抛光,样品的厚度为0.90 mm,晶体加工按照光谱级加工.

## 2.3. 实验测试

利用Letiz大视场显微镜和偏光显微镜对样品的表面形貌进行观察,通过双晶摇摆对晶体的完整性进行表征,用JASCO V-570 UV/VIS/NIR光谱仪对样品的吸收谱进行了测试.

## 3. 结果和讨论

### 3.1. 生长条纹和侧心观察

掺杂的YAG晶体具有严重的小面生长,一般而

热区都不移动,这就消除了由于机械运动而产生的熔体涡流,控制加热功率以及循环冷却水的温度,使晶体生长在稳定的温度梯度场中进行,抑制了熔体的涡流和对流,可以消除固液界面上温度和浓度的波动,以避免晶体造成过多的缺陷.另外,刚生长出来的晶体被熔体所包围,这样就可以控制它的冷却速率,以减少晶体的热应力以及由此产生的开裂和位错等缺陷.

晶体结束后我们进行退火,退火的程序如下:将晶体以70 °C/h的速度升温至1550 °C保温48 h,然后以30 °C/h的速度降至室温.这样可以消除应力,退火后晶体由褐色甚至黑褐色变为粉红色(如图1所示).

言,沿[111]方向生长的掺杂YAG晶体容易出现的三个小面是与[111]夹角为19°28'的{112}面组,当固液曲率半径更小,三个与[111]夹角为35°16'的{110}面组也能成为小面(如图3(a))小图所示,出现了5个区域.由小面产生的应力容易使杂质离子聚集.沿生长轴观察有小面的晶体均可以看到相应于小面生长的区域存在有应力双折射现象,通常将晶体中这个区域称为核心.

图3(a)所示为Cz生长的Nd:YAG晶体的(111)晶面上观察到的核心,呈“人”形状.研究表明,核心区域的密度较其周边区域的密度要低,这主要归结于小晶面的存在阻止了位错的发展.但是小面生长形成的核心却破坏了晶体的光学均匀性,减小固液界面的曲率半径以及增大固液界面处的温度梯度可以适当减小小面的面积.晶体生长过程中,中间的核心会一直存在,如图3(b)所示.

图3为TGT生长的Nd:YAG晶体,其中图3(a)为靠近籽晶处平行于111方向锥形纵切片上观察

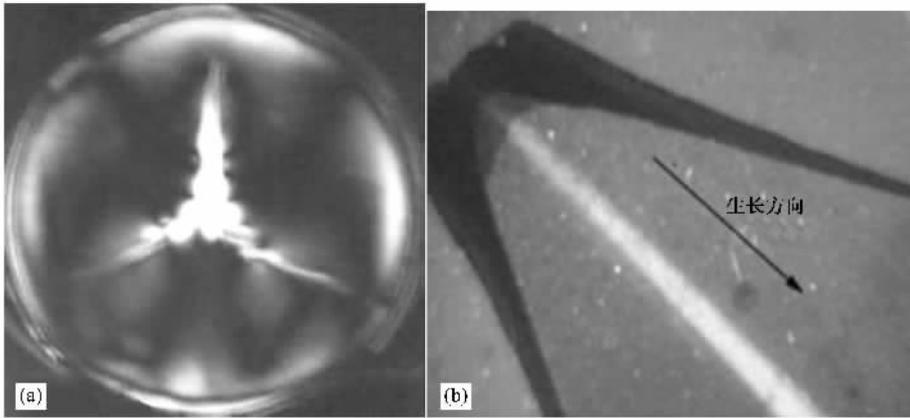


图 2 Cz-Nd:YAG 晶体中(111)晶面上的侧心

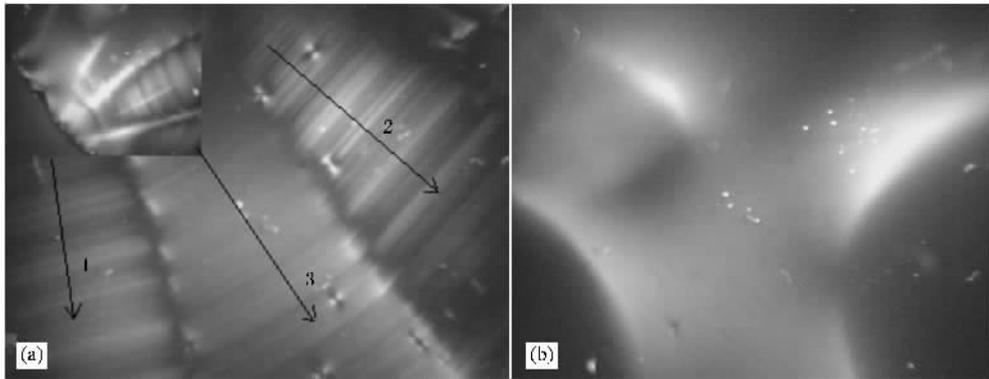


图 3 TGT-Nd:YAG 晶体中(111)晶面上的侧心

到的生长条纹.从图中可以清晰地看到相互平行的生长条纹,这些生长条纹又可以分为三个部分,如图箭头 1、2 和 3 分别对应的应力区.图 3(a)的插图为最靠近籽晶处的纵切片,从中我们可以看出开始有五个固液截面推进的方向:与 $[111]$ 方向夹角分别约为 $19^{\circ}28'$ 和 $35^{\circ}16'$ .随着晶体的生长,在放肩处与 $[111]$ 方向夹角分别约为 $35^{\circ}16'$ 的面被逐渐排向晶体外面.

生长条纹的形状与固液界面的形状相一致,因此,生长条纹的发展代表着晶体生长时固液界面推进的历史,图 3(a)中 1、2、3 的箭头所指的方向为固液截面推进的方向,其中箭头 3 为 $[111]$ 方向.从图中可以看出,TGT 生长 Nd:YAG 晶体时,熔体中固液界面形状为微凸向熔体的,并且有明显的分界,中间部分对应的平界面,而边缘部分对应凸界面.在边缘的凸界面上,由于固液界面的曲率较小,所以 Nd:YAG 晶体的奇异面容易发展成为小面进行生长并集聚大量的杂质离子而形成核心,而平界面处对应

的为非核心区.

图 3(b)所示为 TGT 生长的 Nd:YAG 晶体(111)晶面上观察到的核心,图所示晶片的截面积为 $50 \times 50 \text{ mm}^2$ .因为 TGT 生长的晶体尺寸较大(直径为三英寸),晶体中心部位的固液界面为平界面(如图 3(a)中箭头 3 所示),而且平界面的区域随着固液界面的推进而增大,所以,TGT 生长的 Nd:YAG 晶体的核心被排除到晶体的边缘而形成所谓的“侧心”,如图 3(b).图中的侧心均为晶体边缘凸向熔体的固液界面上 YAG 晶体的奇异面发展的小面形成的.根据图 3(a),晶体中心平固液界面法线方向(如图 3(a)箭头 3 所示)与晶体边缘凸固液界面法线方向(如图 3(a)箭头 1、2 所示)的夹角约为 $20^{\circ}$ 左右,因此可以判断 TGT 生长的 Nd:YAG 晶体(111)晶面上的三个核心(如图 3(b)所示的三个侧心)应该对应于 $[111]$ 方向夹角约为 $19^{\circ}28'$ 的 $\{112\}$ 晶面面组的三个小面,小面的面指数分别为 $(2\bar{1}\bar{1})$ 、 $(\bar{1}2\bar{1})$ 、 $(\bar{1}\bar{1}2)$ 小面.只有通过调节 TGT 生长系统的温场使得晶体

生长过程尽量保持平坦的固液界面才能减小晶体中的核心, 而使 Nd 离子在晶体的径向分布更均匀.

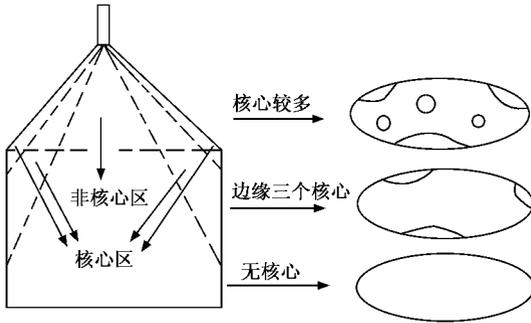


图 4 TGT 生长 Nd:YAG 晶体核心分布示意图

图 4 给出了 TGT 生长 Nd:YAG 晶体小面生长核心区的示意图. 从图 4 可知, 晶体生长到最后核心越来越小, 直到变没有.

### 3.2. 放肩区及核心区内吸收光谱的区别

晶体籽晶到放肩处由于晶体边缘凸向熔体的固液界面上的曲率半径较小, 容易形成严重的小面生长. 我们在垂直于 111 方向上(如图 3)分别测试了中心核边缘的三个点的吸收谱, 如图 5. 吸收系数可以由如下式计算:

$$\alpha(\lambda) = \frac{2.303I_0(I)}{l}, \quad (2)$$

式中  $I_0(I)$  是光强度,  $l$  是样品的厚度. 从图 5 我们可以看出, 边缘的吸收光谱大于中心, 这与图 3 观察到的结果一致. 同时可以看到散射比较厉害, 说明放肩区晶体的质量较差. 由于 TGT 生长晶体时籽晶不像 Cz 那样可以进行缩颈处理, 籽晶中的缺陷会进入晶体导致放肩处晶体的质量较差, 所以选择籽晶时一定要选取质量较好的晶体.

我们知道核心的存在会破坏晶体的光学均匀性, 严重降低激光效率. 所以对核心区进行研究, 以尽可能地减少核心区的面积是非常重要的. 我们测量了图 2 所示的核心区和非核心区的三个部位的吸收系数, 如图 6 所示. 从图中我们可以看出: 核心区在 808 nm 处的吸收系数大于非核心区, 说明核心区的 Nd 离子的浓度大于非核心区, 这与图 2 在偏光显微镜下观察到的结果一致. 另外由于我们的样品取自放肩处(如图 4 所示, 在放肩处核心明显) 此处晶体的质量不好, 存在杂质, 应力等缺陷, 所以散射较为厉害, 由图 6 可知, 靠近短波段处, 散射非常严重(存在较为严重的瑞利散射和米氏散射).

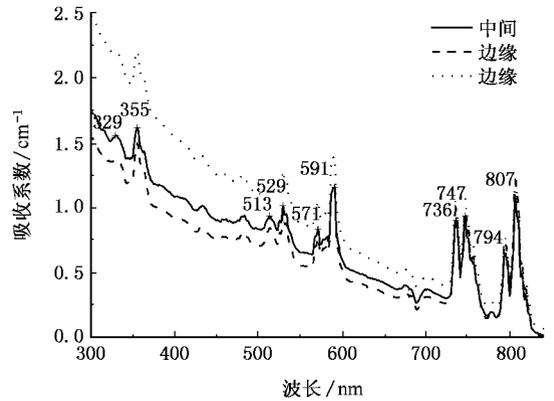


图 5 放肩区吸收谱比较

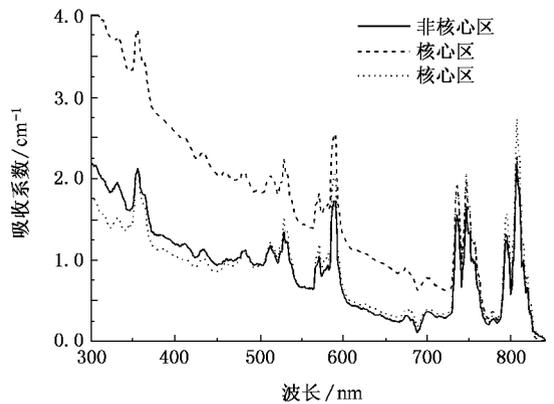


图 6 核心区和非核心区的吸收谱

### 3.3. TGT 与 Cz 生长 Nd:YAG 吸收光谱比较

图 7 比较了 TGT 和 Cz 生长 Nd:YAG 晶体吸收光谱的区别, 从图中我们可以看出, TGT 生长的晶体 Nd 离子在 808 nm 处的吸收发生蓝移, 峰值出现在 807 nm, 相比于 Cz 生长 Nd:YAG 晶体在 808 nm 处

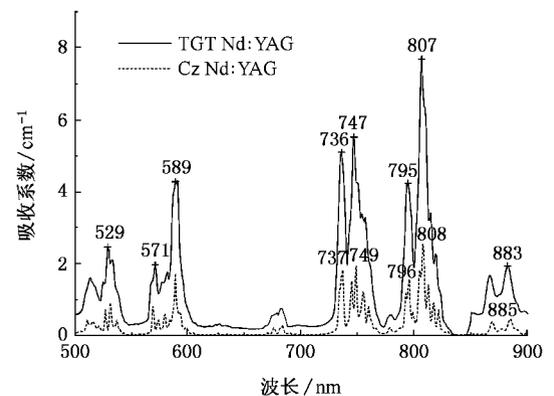


图 7 TGT 生长 Nd:YAG 无核心区吸收谱与 Cz 生长

的吸收半高宽变宽 5 nm ,TGT 的半高宽变宽为 8 nm ,降低了对 LD 的要求 ,这非常适合于 LD 抽运 . 所以 TGT 生长 Nd:YAG 晶体有一系列优势 :可以生长无核心大尺寸晶体 ,808 nm 处的半高宽较宽 .

可能是以下原因导致 TGT 生长高浓度 Nd:YAG 晶体出现蓝移 . 晶体生长过程中没有搅拌 ,属于强制结晶 ,所以晶体生长过程中浓度比较高 ( > 1.5at% ) 的 Nd 离子可以掺入晶体 ( 而用 Cz 生长晶体时比较难于掺入高浓度的 Nd 离子 ) ,进而导致晶格发生较大变形 ,晶场强度增加使得 Nd 离子的斯塔克斯分裂加剧 ,光谱发生蓝移 . 当晶体中 Nd 离子的掺杂浓度大于 2 at% 时 ,吸收峰值更会蓝移到 806.7 nm . 同时使得 Nd 离子的吸收半高宽增大 .

TGT 与 Cz 的本质区别是 ,在 Cz 中 ,熔体的温度梯度与重力场的方向相同 ,因此由温度梯度以及重力的作用引起的自然对流在 Cz 中比较明显 ;相反 ,在 TGT 中 ,熔体的温度梯度与重力场的方向相反 ,可以有效地抑制由重力作用引起的自然对流 ,这对晶体生长的固液界面的稳定具有重要的作用 . 另外 ,在 Cz 生长晶体的过程中 ,由于晶体直接向周围

环境散热 ,温度下降很快 ,晶体中往往会聚集大量的热应力 ,这些热应力促进空位、位错等缺陷在晶体中形成 ,而 TGT 在生长晶体的过程中 ,由于采用缓慢的降温速率 ,有利于空位的消除和抑制大量位错的产生和增殖 . 因此 ,在一定程度上 ,TGT 有利于提高晶体的质量 .

## 4. 结 论

利用 Leitz 大视场显微镜和偏光显微镜对样品的表面形貌进行观察 ,研究了 TGT 和 Cz 生长 Nd:YAG 晶体核心分布的区别 ,结果显示 ,TGT 生长的 Nd:YAG 晶体由于核心分布在周围 ,并且随着晶体的生长核心在变小 ,所以 TGT 非常适合于生长大尺寸盘片晶体 . 利用吸收谱研究了核心区内外及放肩区吸收谱的区别 ,放肩区的晶体质量较差 ,有较多的散射 . 比较了两种方法生长的 Nd:YAG 晶体吸收光谱的区别 . TGT 生长的 Nd:YAG 晶体在 808 nm 处的吸收发生蓝移 ,吸收峰值位于 807 甚至 806.5 nm .

- [ 1 ] Dong J , Deng P Z , Gan F X *et al* 2001 *Opt. Commun.* **197** 413  
 [ 2 ] John V , Rashmi S , Tom E *et al* 2004 *SPIE*. **5332** 235  
 [ 3 ] Zeng X H , Zhao G J , Xu J 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 1935 ( in Chinese ) [ 曾雄辉、赵广军、徐 军 2004 物理学报 **53** 1935 ]  
 [ 4 ] John V , Andrea K , Rashmi S *et al* 2003 *SPIE* **4968** 55  
 [ 5 ] John V 2002 *SPIE* **4623** 104  
 [ 6 ] Yan C F , Zhao G J , Hang Y *et al* 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3745

( in Chinese ) [ 严成锋、赵广军、杭 寅等 2005 物理学报 **54** 3745 ]

- [ 7 ] Zhao G J 2003 *Ph D paper* Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics , Chinese Academy of Sciences p102 ( in Chinese ) [ 赵广军 2003 博士论文 中国科学院上海光学精密机械研究所 第 102 页 ]

# Core center distribution of Nd:YAG crystal grown by Temperature gradient technique \*

Jiang Ben-Xue<sup>1,2)</sup> Xu Jun<sup>1)†</sup> Li Hong-Jun<sup>1)</sup> Wang Jing-Ya<sup>1)</sup> Zhao Guang-Jun<sup>1)</sup> Zhao Zhi-Wei<sup>1)</sup>

1 *Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China*

2 *Graduate School of Chinese Academy of Science, Beijing 100049, China*

( Received 31 December 2005 ; revised manuscript received 17 September 2006 )

## Abstract

Large size (  $\phi 75$  mm ) high quality Nd:YAG crystals were grown by the temperature gradient technique ( TGT ). The carbon atoms were eliminated after O<sub>2</sub> annealing. We have studied the core distribution and growth stripes by Zygo interferometer and orthogonal polarization microscope. The absorption spectra of Nd:YAG crystal at room temperature have been measured. The distribution of Nd ions in Nd:YAG crystal were studied by using absorption spectra. A comparison of temperature gradient technique and Czochralski ( Cz ) grown Nd:YAG crystals was made.

**Keywords** : materials , defects , TGT method , Nd:YAG

**PACC** : 6150E , 8110F

† Corresponding author. E-mail : xujun@mail.shcnc.ac.cn