

文章编号: 0258-702X(2002)02-0173-03

Yb:YAG 晶体的热学性质

邱宏伟, 钟鹤裕, 李红军, 邓佩珍, 徐 军, 陈 伟

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

提要 对中频感应提拉法生长的不同掺杂浓度的 Yb:YAG 晶体的比热和导热性能进行了测试。表明 Yb³⁺ 离子的掺杂导致了晶体比热的减小和晶体导热性能的降低, 并认为导热性能降低是 Yb³⁺ 掺杂产生的晶格畸变导致的。

关键词 Yb:YAG 提拉法 吸收光谱 比热 热扩散率 热导率

中图分类号 TN 244 J0 735 文献标识码 A

Thermal Properties of Yb:YAG Laser Crystal

QIU Hong-wei, ZHONG He-yu, LI Hong-jun, DENG Pei-zhen, XU Jun, CHEN Wei

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

Abstract Yb:YAG laser crystals are grown by the Czochralski technique. The specific heat and thermal diffusivity data of Yb:YAG are measured. It shows that the doping of Yb³⁺ ions leads to the decrease of specific heat and thermal diffusivity, especially when the doping concentration is high. And the decrease of the latter is regard as the result of lattice deformation caused by the doped Yb³⁺ ions.

Key words Yb:YAG, Czochralski technique, absorption spectrum, specific heat, thermal diffusivity, thermal conductivity

80 年代末,随着激光二极管(LD),尤其是波长在 900~1100 nm 的 InGaAs LD 的发展,LD 抽运的固体激光器成为固体激光器发展的主要趋势之一。由于 Yb³⁺ 激活离子具有许多适合 LD 抽运的特点,如在相对较高的掺杂浓度下也不会出现浓度淬灭,荧光寿命长,能有效储存能量;Yb³⁺ 离子吸收带能与 InGaAs 半导体抽运源(870~1100 nm)有效耦合;吸收带较宽^[1~4]等,因此掺杂 Yb³⁺ 离子激光材料引起了人们的研究兴趣。

在激光实验中增益介质的热致畸变影响了激光运行模式和激光输出的质量,有时甚至严重损害了激光效率。T. Y. Fan 对 Yb:YAG 晶体热负荷的测试研究表明^[4],Yb:YAG 晶体具有较小的热负荷,仅为 Nd:YAG 晶体的 1/3,为 Yb:YAG 晶体的激光性能的研究奠定了基础。但热畸变不但受材料热负荷的影响,还受热学性能、机械性能及光谱性能的影响。在 Yb:YAG 晶体中,Yb³⁺ 离子的掺杂必然影响材料的物理性能,尤其是热学性能。而目前 Yb:YAG 晶体激光系统设计中,多参考纯 YAG 晶体的热学参

数^[2],因此确定不同掺杂浓度的 Yb:YAG 晶体的热学参数,对于不同掺杂浓度 Yb:YAG 晶体激光系统的设计、优化是十分必要的。

1 实 验

Yb:YAG 晶体的生长采用中频感应提拉法(Czochralski technique)。所用原料为:Al₂O₃,Y₂O₃,Yb₂O₃ 纯度为 99.99%。原料严格按化学计量混合,经研磨、混合、加压成块后,在空气中 1000℃ 预烧,然后装入铱金坩埚。籽晶方向为 111,生长过程中以氮气作为保护气体,提拉速率为 2.2 mm/h,晶体的旋转速度约为 20 r/min。为消除晶体的颜色和应力,在 1600℃ 氧气氛下进行退火处理。

晶体吸收光谱测试在常温下进行,所用光谱仪为 Lambda 9 UV/VIS/NIR,晶体样品厚度为 4 mm。测试范围为 300~800 nm。采用差分扫描量热计法(DSC, Differential Scanning Calorimetry)对晶体的比热(C_p)进行了测量,测量仪器为 SHIMADZU(岛津)生产的 DSC-50 型带有 LTC-50 冷却单元的差分扫描量热计,灵敏

收稿日期 2000-12-22;收到修改稿日期 2001-03-20

作者简介 邱宏伟(1976—),男,山东省人,硕士,主要从事激光与光电子晶体材料研究。E-mail:qhongwei@163.net

度为 1% ,参比样品为 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$,测试时升温速率为 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ 。采用激光脉冲法对 Yb:YAG 晶体的热扩散系数进行测量 ,测试样品尺寸为 $\phi 10\text{ mm} \times (1 \sim 2)\text{ mm}$,测试温度范围为 $25 \sim 300^\circ\text{C}$ 。测试采用氙灯抽运的钨玻璃激光器 ,输出波长为 $1.06\ \mu\text{m}$,脉冲宽度为 $0.6\ \text{ms}$,脉冲能量达 $20\ \text{J}$ 。

对 Yb:YAG 和纯 YAG 的晶格参数进行了测量。实验仪器为 RAX-10 型 X 射线衍射仪 ,所用波长为 $0.1540598\ \text{nm}$,Yb:YAG 晶体的掺杂浓度为 $30\ \text{at.}\%$ 。Yb:YAG 晶体的拉曼光谱测试仪器为 LabRam-1B 型显微拉曼光谱仪。激发源为 He-Ne 激光器 ,激发波长为 $632.8\ \text{nm}$ 。晶体样品的 Yb^{3+} 离子掺杂浓度为 $30\ \text{at.}\%$,光源垂直于 $1\bar{1}0$ 面 ,信号接收方向与入射方向成 180° 。

2 结果与讨论

提拉法生长的 Yb:YAG 晶体呈现淡蓝绿色 ,这是由于色心吸收导致的^[5]。由于色心、位错和宏观应力的分布不均匀性对晶体的导热性质有严重影响 ,因此对晶体进行了高温退火。由晶体的吸收光谱(见图 1)可看到 ,高温退火后 $370\ \text{nm}$ 和 $625\ \text{nm}$ 处的宽带色心吸收消失。对高温退火后的 Yb:YAG 晶体的热学参数进行了测试。

图 2 是不同浓度 Yb:YAG 晶体的比热-温度变化曲线。可以看到 ,在室温下 Yb^{3+} 离子的掺杂导致晶体材料的比热发生了较大变化 ,且随掺杂浓度增加比热减小。掺杂浓度为 $2.5\ \text{at.}\%$ 和 $20\ \text{at.}\%$ 的晶体相比 ,在较低温度下 ($25 \sim 200^\circ\text{C}$) $2.5\ \text{at.}\%$ 掺杂的晶体具有高的比热。在激光实验中 ,增益介质的温度一般处于上述的较低温度范围内。在产生相

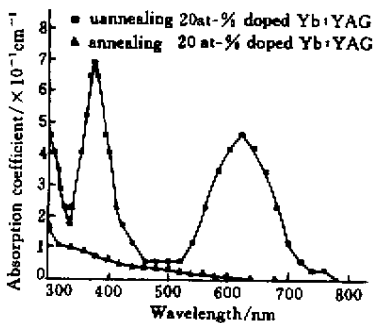


图 1 Yb:YAG 晶体中的色心吸收

Fig.1 Absorption of color center in Yb:YAG

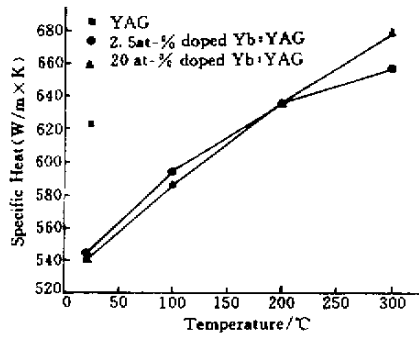


图 2 Yb:YAG 晶体的比热 (■ 纯 YAG 晶体比热)

Fig.2 Specific heat of Yb:YAG (■ : specific heat of YAG)

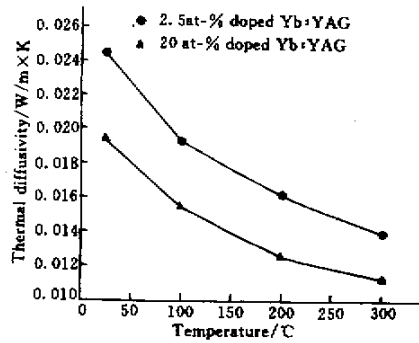


图 3 Yb:YAG 晶体的热扩散率

Fig.3 Thermal diffusivity of Yb:YAG

同热量的条件下 ,由于高掺杂浓度晶体比热较小 ,因此晶体温度将发生更大的变化 ,从而导致较大的热畸变 ,不利于获得高质量的激光输出。同时 ,不同掺杂浓度晶体比热随温度升高而升高的速率不同。这说明温度对不同掺杂浓度 Yb:YAG 晶体的影响是不同的。由图 2 可知 ,高掺杂浓度下比热-温度曲线的斜率高于低掺杂浓度时的斜率 ,表明温度对高掺杂浓度 Yb:YAG 晶体热学参数的影响更大。

图 3 为 Yb:YAG 晶体的热扩散率 α 随温度的变化曲线 ,明显可观察到 Yb^{3+} 离子掺杂浓度对 α 的影响。在室温下 $20\ \text{at.}\%$ 掺杂的 Yb:YAG 晶体与 $2.5\ \text{at.}\%$ 掺杂的 Yb:YAG 相比 ,热扩散率从 $0.0245\ \text{cm}^2/\text{s}$ 下降到 $0.0193\ \text{cm}^2/\text{s}$,下降了 27% 。与 $1\ \text{at.}\%$ 掺杂的 Yb:YAG ($0.038\ \text{cm}^2/\text{s}$)^[6] 相比 ,下降了近一半。从图 3 还可以看到 ,温度对晶体的热扩散率同样有重要影响。随着温度的升高 ,Yb:YAG 晶体的热扩散率下降速率减慢。这表明 ,在激光系统中采取合理的冷却系统 ,控制增益介质在一定的温度范围内 ,对获得高质量的激光输出是非常重要的。

通过方程 $\lambda = \alpha \times \rho \times C_p$ 可获得室温下不同掺杂浓度 Yb:YAG 热导率(表 1) 。其中 ρ 为晶体的密

度。图 4 为本文测定的热导率及纯 YAG 晶体^[2]的热导率-温度曲线。从图可以看到掺杂 Yb³⁺ 离子后 YAG 晶体热导率的明显变化,室温下的测量结果

(6.07 W/m·K(2.5 at.-%) 4.74 W/m·K(20 at.-%))与纯 YAG 晶体^[7,8]的热导率差距是明显的。

表 1 Yb:YAG 与 YAG 晶体的热导率

Table 1 Thermal conductivity of Yb:YAG and YAG

Sample	Temperature	200 K	~ 300 K	373 K	473 K	573 K	Ref.
	Thermal conductivity /W·m ⁻¹ ·K	20 at.-%		4.74	4.12	3.61	3.45
2.5 at.-%			6.07	5.19	4.60	4.14	This work
YAG		21	13				[7]
YAG		16	10.3				[8]

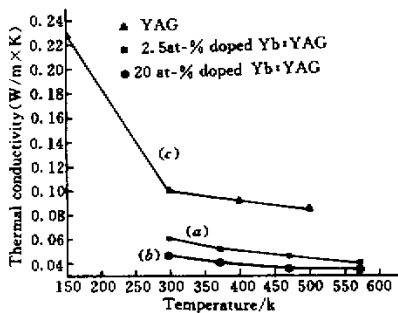


图 4 Yb:YAG 和 YAG 晶体的热导率

(a)(b)测量结果 (c)文献[2]数据

Fig.4 Thermal conductivity of Yb:YAG and YAG

(a)(b)the data of our measurement ;(c) data in the Ref.[2]

Yb:YAG 晶体的导热性质在掺杂后,特别是高掺杂时发生了很大改变,这可能与 Yb³⁺ 离子的掺杂后导致的晶格畸变有关。对高浓度掺杂的 Yb:YAG 晶体的 X 射线粉末衍射实验表明, Yb³⁺ 离子的掺杂导致晶体晶胞参数发生较大的变化。在掺杂浓度达到 30 at.-% 时,晶胞参数由纯 YAG 晶体的 1.2008 nm 降为 1.1978 nm,表明 Yb³⁺ 离子的掺杂引起了晶体结构的畸变。在 Yb:YAG 晶体中, Yb³⁺ 离子掺杂代替 Y³⁺ 离子,进入 8 个氧离子配位的 12 面体格位。由于 Yb³⁺ 离子的有效半径比 Y³⁺ 离子的小,分别是 0.0985 nm 和 0.1019 nm,离子替代后晶体产生了微观结构的畸变。

晶格畸变将影响到晶体的晶格振动。图 5 为 Yb:YAG 晶体的拉曼光谱。对比纯 YAG 晶体的拉曼光谱^[9], Yb:YAG 在 800 ~ 1200 cm⁻¹ 出现了 5 个拉曼位移。这表明晶格畸变导致产生了新的晶格振动。由于 YAG 晶体中没有自由电子,声子导热是热传导的机制,因此晶格振动的变化必然导致晶体导热性能的改变。掺杂浓度增加时,畸变程度相应增强,晶格振动频率发生更大变化,因此高掺杂浓度

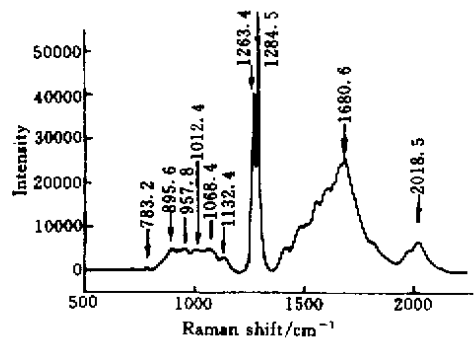


图 5 室温下 Yb:YAG 晶体的拉曼光谱

Fig.5 Raman spectra of lattice vibrational modes recorded in Yb:YAG at room temperature between 500 and 2250 cm⁻¹

对 Yb:YAG 晶体具有更低的热导率。

参 考 文 献

- 1 Laura D. DeLoach, Stephen A. Payne, L. L. Chase *et al.*. Evaluation of absorption and emission properties of Yb³⁺ doped crystals for laser applications [J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1993, **29**(4):1179 ~ 1191
- 2 David C. Brown. Ultrahigh-average-power diode-pumped Nd:YAG and Yb:YAG lasers [J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1997, **33**(5):861 ~ 873
- 3 T. Y. Fan. Optimizing the efficiency and stored energy in quasi-three-level lasers [J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1992, **28**(12):2692 ~ 2697
- 4 T. Y. Fan. Heat generation in Nd:YAG and Yb:YAG [J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1993, **29**(6):1457 ~ 1459
- 5 Hongbing Yin, Peizhen Deng, Fuxi Gan. Defects in YAG:Yb crystal [J]. *J. Appl. Phys.*, 1998, **83**(7):3825 ~ 3828
- 6 Hans Bruesselbach, David S. Sumida. 69-W-average-power Yb:YAG laser [J]. *Opt. Lett.*, 1996, **21**(7):480 ~ 482
- 7 P. H. Klein, W. J. Croft. Thermal conductivity, diffusivity, and expansion of Y₂O₃, Y₃Al₅O₁₂, and LaF₃ in the range 77 ~ 300K [J]. *J. Appl. Phys.*, 1967, **38**(4):1603 ~ 1607
- 8 Glen A. Slack, D. W. Oliver. Thermal conductivity of garnet and phonon scattering by rare-earth ions [J]. *Phys. Rev.*, 1971, **4**(2):592 ~ 609
- 9 J. P. Hurrell, S. P. S. Porto. Optical phonons of yttrium aluminum garnet [J]. *Phys. Rev.*, 1968, **4**(2):851 ~ 856