بیستمین کنفرانس اپتیک و فوتونیک ایران
و ششمین کنفرانس مهندسی و فناوری فوتونیک ایران
۸ تا ۱۰ بهمن ماه۱۳۹۲ - دانشگاه صنعتی شیراز

مطالعه تجربی تعیین غلظت و ضریب موثر توزیع ناخالصی Nd در کریستال لیزری Nd:YAG به روش جذب اپتیکی

حسین سعیدی، مرتضی اسدیان و شهاب عنایتی

مرکز ملی علوم و فنون لیزر ایران، صندوق پستی۵۷۶-۱۴۶۶۵، تهران

چکیده - کریستال *Nd:YAG* با غلظت‌ها متنوع نئودیمیوم *(0.6-1.1at%)* با طول مفید ۱۲۰ میلی‌متر و قطر ۵۰ میلی‌متر به روش چوکرالسکی رشد داده شده‌اند. با استفاده از روش طیف جذب اپتیکی، غلظت ناخالصی *Nd* در طول کریستال و همچنین ضریب مؤثر توزیع (k_{eff}) آن اندازه‌گیری و محاسبه گردیده است. نتایج حاصل نشان می‌دهد، در صورت ثابت بودن پارامترهای رشد مقدار k_{eff} بدست آمده برای تمامی بلورهای مورد آزمایش ثابت و برابر۰/۲۳۷ است. همچنین ضریب مؤثر توزیع *Nd* مستقل از غلظت اولیه آن در مذاب است و تنها به شرایط و پارامترهای رشد بلور وابسته است.

کلید واژه- کریستال Nd:YAG، ضریب مؤثر توزیع، طیف جذبی، غلظت ناخالصی.

Experimental Investigation on Determination of Concentration and Effective Distribution Coefficient of Nd Dopant in Nd:YAG crystal by Optical Absorption Method

Hossein Saeedi, Morteza Asadian and Shahab Enayati

Iranian National Center of Laser Science and Technology, Tehran, P.O. Box 14665-576,

Abstract- Nd:YAG crystals with various concentration of Nd (0.6 – 1.1 at%) have been grown by Czochralski method. The concentration of Nd dopant and its effective distribution coefficient (k_{eff}) in Nd:YAG crystal were measured and calculated by using optical absorption method. The results show that Nd:YAG crystals grown with similar growth parameters have constant k_{eff}=0.237. Moreover, the effective distribution coefficient of Nd dopant is independent on its initial concentration in melt.

Keywords: dopant concentration, distribution coefficient, absorption spectrum, Nd:YAG crystal.

[Downloaded from opsi.ir on 2025-07-20]

۱- مقدمه

همزمان با پیدایش و پیشرفت دانش کوانتوم نوری، رشد بلور در ارتباط نزدیک با فناوری لیزر و اپتیک بوده است. بلورهای اکسیدی از جمله مواد حالت جامد هستند که بدلیل خواص مناسب ترموفیزیکی، شیمیایی، متالوژیکی و اپتیکی مورد استفاده وسیعی در تولید لیزر با طول موجهای متنوع قرار می گیرد[۱،۲]. در این بین، بلور Nd:YAG از جمله کریستالهای لیزری متداول در تولید طول موج لیزری 1064nm با درصد چگالی ناخالصی (Nd) از 0.1at% تا 1.1at% می باشد. بیشترین کاربرد این بلور در صنعت، پزشکی، آنالیز مواد و نظامی است[۳]. رشد کریستال Nd:YAG با چگالی دقیق و صحیح Nd از چند جنبه به شرح ذیل مورد اهمیت است.

الف) میزان غلظت ناخالصی بر ضریب جذب (α) در طول موج پمپ مطابق با معادله $\alpha=N_s\sigma_{abs}$ تاثیر می گذارد. بطور مشابه نیز بهره لیزر (g) طبق رابطه $g=n_2N_s\sigma_{em}$ تحت تاثیر چگالی ناخالصی Nd می‌باشد. در این معادلات N_s : چگالی عددی ناخالصی در واحد حجم، σ_{abs} و σ_{em} سطح مقطع جذب پمپ و تابش لیزر و n_2 : چگالی عددی تراز برانگیخته لیزری در واحد حجم می باشند.

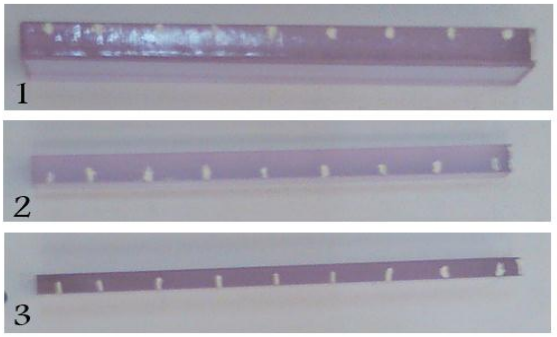
ب) چگالی ناخالصی بالا سبب پدیده خاموشی (Quenching) در طول عمر ترازهای بالاتر می گردد. این پدیده ناشی از انتقال انرژی بین یونها می باشد که در نتیجه سبب کاهش بازده و توان لیزر می شود.

ج) مقادیر بالای غلظت ناخالصی سبب افزایش دما، گرادیان دمایی و تنش حرارتی کریستال در هنگام پمپ لیزری می‌شود[۴].

اندازه گیری صحیح غلظت ناخالصی منجر به محاسبه و تعیین دقیق ضریب موثر جدایش ناخالصی،K_{eff}، و رشد کریستالهایی با چگالی ناخالصی دقیق تر می شود. با توجه به اهمیت مقدار دقیق ناخالصی در کریستالهای لیزری، انتخاب روش مناسب در تعیین درست چگالی ناخالصی ضروری به نظر می رسد. روش های آزمایشگاهی متفاوتی از قبیل ICP-Ms، EDS، WDS و روش جذب اپتیکی برای اندازه گیری غلظت ناخالصی وجود دارد[۵و۶]. در این میان روش های EDS، WDS بدلیل مشکلات آماده سازی سطح، ایجاد تخریب در نمونه های بزرگ و خطا در اندازه گیری انرژی و شدت موج بازتاب ناشی از پدیده فلورسانس دقت کافی ندارد[۶و۷]. تکنیک ICP-Ms هر چند بسیار دقیق می باشد ولی بدلیل مشکلات فراوان در آماده سازی محلول مناسب و همچنین تخریب نمونه بلوری معمولا مورد استفاده قرار نمی گیرد. روش جذب اپتیکی از جمله روشهای غیر مخرب، دقیق و آسان مورد استفاده در اندازه گیری چگالی ناخالصی می باشد. از آنجایی که وجود یک دستگاه تخصصی اپتیکی به منظور سنجش درصد ناخالصی بلوری گزارش نشده است و با توجه به اهمیت تعیین دقیق آن، در این مقاله به ارائه روش جذب اپتیکی جهت اندازه گیری غلظت ناخالصی پرداخته شده است. همچنین با اندازه گیری چگالی نا-خالصی در طول کریستال برای نمونه های مختلف با روش جذب اپتیکی، تغییرات غلظت در طول بلور و ضریب موثر جدایش ناخالصی Nd در کریستال مورد بررسی و محاسبه قرار گفته است.

۲- فرآیند آزمایشگاهی

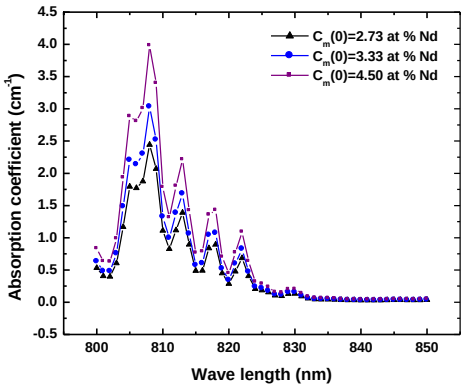
تمام کریستالهای Nd:YAG مورد آزمایش به روش چوکرالسکی (Cz) رشد داده شده اند. مواد اولیه مورد نیاز شامل پودرهای اکسیدی Y_2O_3 ، Al_2O_3 و Nd_2O_3 با خلوص 4N می باشند. پس از آماده سازی مواد با مقادیر مشخص ۲/۷۳، ۳/۳۳و ۴/۵درصد اتمی Nd، درون بوته از جنس ایریدیوم با ابعاد قطر ۱۲۰ و ارتفاع ۱۲۰ میلی‌متر قرار داده شد و با آرایش مناسبی از عایقهای حرارتی با جنس ZrO_2 گرادیان دمایی لازم برای رشد بلور به روش چوکرالسکی با القای الکتریکی تامین گردید. تمامی بلورها با آهنگ کشش mm/hr ۰/۴ -۰/۶ و چرخش rpm ۱۸-۲۰ در اتمسفر گاز آرگون رشد داده شدند. از بلورهای رشد داده شده با ابعاد قطر و طول مفید به ترتیب ۵۰×۱۲۰ میلی‌متر سه قطعه میله با مقطع مستطیل از قسمت قطر ثابت مطابق شکل ۱ استخراج شد.



شکل ۱: میله‌های مکعبی استخراج شده از سه کریستال Nd:YAG

[Downloaded from opsi.ir on 2025-07-20]

دو وجه روبروی هر نمونه در راستای طول پولیش داده تا شفافیت لازم جهت انجام طیف عبوری حاصل شود. تعداد ۹ نقطه در راستای طول هر نمونه با فاصله های معین انتخاب گردید. با توجه به آنکه ناخالصی Nd در ناحیه طول موج ۸۰۸ نانومتر بیشترین درصد جذب اپتیکی را دارد، لذا طیف عبوری هر نقطه در بازه طول موجی ۸۰۰ تا۸۵۰ نانومتر به کمک دستگاه طیف سنج نوری Varian اندازه گیری گردید. نمودار طیف عبوری نقطه ابتدایی سه نمونه مورد آزمایش استخراج شده از سه کریستال رشد داده شده با مشخصات غلظت ناخالصی متفاوت در مذاب اولیه (C_m) شامل ۲/۷۳، ۳/۳۳ و ۴/۵ درصد اتمی Nd در شکل ۲ نشان داده شده است.



شکل ۲: طیف جذب کریستال Nd:YAG به ازای غلظت متفاوت Nd

۳- تئوری

به منظور اندازه گیری درصد ناخالصی Nd در بلور به روش طیف جذب اپتیکی، ضریب جذب بلور بوسیله رابطه (۱) محاسبه می شود[8].

$$\alpha = \frac{Ln(1-R)^2)/T}{d} \qquad (۱)$$

در این معادله *d*: ضخامت نمونه، T: ضریب عبور کریستال در طول موج مورد مطالعه و R: ضریب بازتاب از سطح کریستال می باشد. ضریب بازتاب مطابق رابطه (۲) به ضریب شکست کریستال (n) مرتبط می شود.

$$R = \frac{(n-1)^2}{(n+1)^2} \qquad (۲)$$

ضریب شکست نیز با فرمول (۳) به طول موج نور(λ) مربوط می گردد.

$$n^2 = A + \frac{B\lambda^2}{\lambda^2 - C} + \frac{D\lambda^2}{\lambda^2 - E} \qquad (۳)$$

در رابطه فوق: A=1 , B=2.2779, C=0.01142, D=E=0

در طول موج ۸۰۸ نانومتر ضریب شکست کریستال Nd:YAG برابر ۱.۸۱۸ می‌باشد. چگالی عددی ناخالصی در واحد حجم کریستال N_s با توجه به فرمول (۴) محاسبه می شود. در این معادله $\sigma_{abs}=7.7\times10^{-20}cm^2$ سطح مقطع جذب در طول موج 808nm می‌باشد.

$$N_s = \frac{\alpha}{\sigma_{abc}} \qquad (۴)$$

رابطه میان درصد مولی ناخالصی(C_s) و N_s با معادله (۵) بیان می شود.

$$N_s = \frac{C_s N_a \rho}{\mu} \qquad (۵)$$

در رابطه فوق $\rho=4.55g/cm^3$ چگالی بلور، $\mu=594.1gr$: جرم مولکولی کریستال و $N_a=6.02\times10^{23}$: عدد آووگادرو می باشد. به کمک سه رابطه (۱)، (۴) و (۵) می توان به یک فرمول نهایی جهت محاسبه درصد مولی ناخالصی (C_s) در کریستال دست یافت.

$$C_s = \frac{\mu.\alpha}{\sigma_{abs} N_a \rho} \qquad (۶)$$

۴- نتایج و بحث

شکل ۲ طیف جذبی از سه نمونه کریستال Nd:YAG در بازه طول موج ۸۰۰ تا ۸۵۰ نانومتر نشان می دهد. دراین شکل مشخص است که درصد جذب کریستال در طول موج ۸۰۸ نانومتر بدلیل حضور ناخالصی Nd، بیشترین مقدار است و در هر بلور متناسب با مقدار چگالی عددی ناخالصی، میزان جذب متفاوت می‌باشد. یعنی هر قدر مقدار درصد اتمی ناخالصی Nd بیشتر باشد میزان جذب اپتیکی بیشتر و در نهایت میزان عبور در این طول موج کمتر خواهد بود. از آنجایی که دستگاه مورد نظر دارای دقت بالایی در اندازه گیری طیف عبوری در کریستال می‌باشد لذا می‌توان بطور دقیق چگالی ناخالصی در کریستال را اندازه گیری کرد. به کمک طیف عبوری (T)، ضریب بازتاب و ضریب شکست با استفاده از معادلات (۱)، (۲) و (۳)، ضریب جذب کریستالها در طول موج ۸۰۸ نانومتر برای نقطه ابتدایی هر نمونه محاسبه شد و با معادله (۶) درصد مولی Nd در سه نمونه محاسبه گردید. نتایج بدست آمده از محاسبه ضریب جذب، درصد مولی، ضریب عبور، غلظت ناخالصی در مذاب اولیه، $C_m(0)$، سه

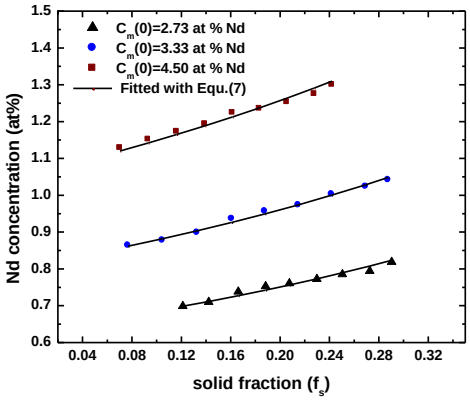
[Downloaded from opsi.ir on 2025-07-20]

بلور مورد بررسی در جدول ۱ آورده شده است. نتایج نشان می‌دهد که با افزایش غلظت ناخالصی در مذاب اولیه مقدار غلظت ناخالصی در یک نقطه مشابه افزایش می‌یابد. با توجه به آنکه ضریب جدایش تعادلی ناخالصی Nd بین جامد و مذاب Nd:YAG کمتر از یک می‌باشد($k_0<1$) بنابراین بدلیل پس زنی ناخالصی Nd در طول فرآیند رشد بلور، غلظت ناخالصی در مذاب افزایش می‌یابد. به عبارت دیگر امکان رشد بلوری با درصد ناخالصی ثابت در طول برای کریستالهای با $k_0<1$ وجود ندارد.

جدول۱: نتایج اندازه‌گیری شده و محاسبه شده از سه نمونه کریستال

بلور	$C_m(0)$ at%	T %	d mm	R %	d mm	α cm^{-1}	$C_s(1)$ at%	k_{eff}
1	2.73	5.62	11.05	8.48	11.05	2.43	0.69	0.232
2	3.33	3.03	5.85	8.48	5.85	3.0	0.86	0.244
3	4.5	3.98	8.10	8.48	8.10	3.96	1.12	0.236

شکل ۳ تغییرات غلظت Nd در طول قسمت قطر ثابت سه کریستال بر حسب کسر حجمی جامد (f_s) را نشان می‌دهد. کسر حجمی جامد با کمک داده‌های رشد که توسط دستگاه چکرالسکی در حین فرآیند رشد برای سه بلور ثبت می‌شود، محاسبه شده است.



شکل ۳: تغییرات غلظت Nd در طول قسمت قطر ثابت برای سه کریستال با غلظتهای مذاب اولیه متفاوت

با محاسبه مقدار صحیح k_{eff} به کمک غلظتهای ناخالصی اندازه‌گیری شده به روش جذب اپتیکی می‌توان کریستالهایی با غلظت ناخالصی بسیار دقیق و مشخص رشد داد. در مبحث رشد بلور به روش چکرالسکی با سرعت رشد بسیار آهسته (میلیمتر بر ساعت) ضریب توزیع k_{eff} می تواند از فرمول زیر محاسبه شود [۹].

$$C_s = C_m(0)k_{eff}(1-f_s)^{k_{eff}-1} \qquad (۷)$$

با توجه به شکل ۳ می توان مقادیر ضریب موثر توزیع را برای هر سه نمونه از فرمول (۷) محاسبه کرد. مقادیر k_{eff} محاسبه شده نیز در جدول ۱ آورده شده است. مقادیر بدست آمده برای ضریب موثر توزیع ناخالصی Nd در کریستال Nd:YAG به طرز جالبی نزدیک بهم هستند و می‌توان نتیجه گرفت که مقادیر میانگین k_{eff} به درصد مواد اولیه بستگی ندارد و فقط به شرایط رشد از قبیل چرخش بلور و کشش بلور بستگی دارد. از آنجا که شرایط رشد این سه بلور تقریبا یکسان بوده، بنابراین مقادیر k_{eff} برای این سه بلور نزدیک به یکدیگر بدست آمده است. در نهایت برای این شرایط رشد k_{eff} باید مقدار میانگین ۰/۲۳۵ در نظر گرفته شود.

۵- نتیجه‌گیری

روش غیر مخرب جذب اپتیکی تکنیکی مناسب برای اندازه‌گیری غلظت ناخالصی Nd در کریستال‌های لیزری می‌باشد. تغییرات غلظت ناخالصی Nd در طول ۱۲۵میلمتر از ناحیه قطر ثابت برای سه کریستال با غلظتهای اولیه متفاوت مقدار 0.16at% اندازه گیری شد. با تعیین غلظت ناخالصی به روش اپتیکی، مقدار ضریب مؤثر توزیع ناخالصی در کریستال معادل ۰/۲۳۵ اندازه-گیری گردید. نتایج نشان می‌دهد ضریب مؤثر توزیع Nd مستقل از غلظت اولیه آن در مذاب است و تنها به شرایط و پارامترهای رشد بلور وابسته است.

مراجع

[1] Kokta M., *Growth of oxide laser crystals*, **Optical Materials**, 30 (2007) 1-5.

[2] Golubovic A., Nikolic S., *The growth of Nd:YAG single crystals*, **J. Serb. Chem. Soc.**, 67 (2002) 291-300.

[3] Kanchanavaleerat E., Cochet D., *Crystal growth of high doped Nd:YAG*, **Optical Materials**, 26 (2004)337-341.

[4] Winkelmann P., Wessels F., *Heat generation in Nd:YAG at different doping levels*, **Appl. Opt**. 51(2012) 7586-90.

[5] Swirkowicz M., Skorczakowski M., *Investigation of Structural, optical and lasing properties of Yb:YAG single crystals*, **Opto-Electronics Review**, 13(2005) 213-220.

[6] Eakins D.E., Held M., *A Study of Fracture and Defects in Single Crystal YAG*, **J. Crys. Growth**, 267 (2004) 502–506.

[7] Yadegari M., AsadianM., Saeedi H., *Formation of gaseous cavity defect during growth of Nd:YAG single crystals*, **J. Crys. Growth**, 367 (2013) 57–61.

[8] Sun D., Zhang Q., *Concentration distribution of Nd in Nd:GGG crystals studied by optical absorption method*, **Cryst. Res. Technol**., 40 (2005) 698-702.

[9] Jackson K., *Kinetic Processes*, p. 137, Wiley-VCH Press, 2010.

[Downloaded from opsi.ir on 2025-07-20]