

铝酸镁镧(LaMgAl₁₁O₁₉:Nd³⁺)晶体生长

·上海光机所 金宗儒·

用高频感应加热引上法生长出φ20×50mm 光学均匀的铝酸镁镧激光晶体毛坯, 由此加工得φ5×40mm的α轴激光棒。进行激光试验已获得57mJ/脉冲的激光输出。

引 言

高效率固体连续激光器是目前激光加工用的主要激光器之一。CO₂激光器虽功率大、效率高, 但体积庞大, 操作复杂, 应用不便。因此, 世界各国竞相研究高效率固体激光器。近年来, 以激活离子构成晶格主成份的铝酸镁镧晶体(La_{1-x}Nd_xMgAl₁₁O₁₉, 简称LNA)作为高功率激光工作物质十分引人注目。LNA具有稳定的化学性, 硬度高(9Mohs), 比Nd³⁺:YAG熔点低(1870°C), 浓度消光比小, 能掺入

比Nd³⁺:YAG高6倍的Nd浓度, 分凝系数大(为1), 原料便宜等优点。这种晶体激光器输出功率高, 可与YAG激光器媲美, 适用于共振能级和控制核聚变反应等研究。

铝酸镁镧与磁铅石同晶, 空间群为Pb₃/mmc, 属六方晶系, 晶体结构比较复杂, 仅Al离子的分布就有5种不同对称性的晶格位, 每一晶胞含二倍的LaMgAl₁₁O₁₉(见图1所示), 晶胞常数 $a = b = 5.581 \text{ \AA}$, $c = 21.98 \text{ \AA}$ ^[1]。

本刊1988年6月收到

外光响应很差, 因此允许如低阈值激光烧蚀效应的观察。虽然准分子激光器在材料加工中有着重要的用途, 但目前还不能作为环境中可靠的工具。因此需要发展高可靠高重复频率紫外激光器。紫外激光在微电子学方面的应用有: 腐蚀和淀积、紫外光辅助外延、液体中光化学、激光辅助等离子体化学和诊断等。

2) 非电子材料的加工

目前有关紫外和远紫外激光材料加工方面, 需要进行与材料互作用过程的基础研究, 并用获得的数据作为发展特定应用的基础, 但是互作用的共同之处是产生等离子体及其在紫外光与样品耦合中所起的作用。必须研究紫外激光产生的等离子体, 因为支配紫外产生的等离子体特性的物理机理与长波发生的等离子体机理差别很大。

目前紫外激光在医学的应用有: a) 生物分子的选择性脉冲紫外激光光化学; b) 激光的组织烧蚀; 大面积组织光医疗实验。其中紫外激光在心病学和血管整形手术方面的应用最受重视。每年大约有20万病人进行心脏 bypass 外科手术和血管整形手术。虽然这两项手术成功率很高, 但是激光汽化动脉粥样硬化病症更有效, 可以有效地消除障碍。然而, 过去的连续波激光器如氩、Nd:YAG和CO₂只是一种热源, 对组织有热损伤, 而对硬化的病变无效。脉冲紫外准分子激光只要适当选择波长、脉冲能量和脉宽, 就能精确地汽化所有类型的病变组织, 而且对组织边缘没有热损伤。紫外激光除上述两方面应用外, 还可以用于眼科治疗和神经连接。另外, 连续波紫外激光在医学诊断方面应用逐渐增加, 例如血球计数器和光动力手术有关的肿瘤判别。

五、医学应用

(玻璃摘自Optics News, April 1988, pp.14~27)

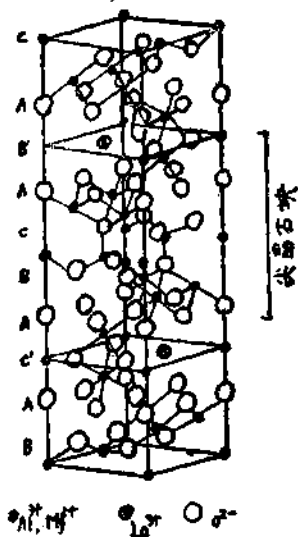


图1 LaMgAl₁₁O₁₉ 单位晶胞

实验与结果

(1) 晶体生长

晶体生长用原料: 氧化镁的纯度为99.5%, 氧化镧的纯度为99.99%, 氧化铝为火焰法生长宝石块, 氧化钕为化学纯粉末。为便于一次完成装料熔化拉晶, 采用氧化镁和氧化镧粉末分别填充于耐油塑料筒内, 用2t/cm²的等静压力进行压制, 取出放在1300°C灼烧6h后, 将MgO, La₂O₃烧结块、碎宝石块, 氧化钕粉按化学比称量后放进铌坩埚内熔化。

单晶炉及炉内装置大致与以往工作相同^[2]。采用铌坩埚为熔体容器及发热体, 无定型氧化锆粉保温, 高频感应加热, N₂为保护气氛, 在YA-2型自制单晶炉上用转速为80rpm、拉速为2mm/h生长晶体。第一次生长晶体用φ2mm铌丝引晶, 生长出的多晶块选取较大尺寸的单晶作为晶种, 用晶种生长晶体切取α轴晶种。激光棒均由α轴生长的晶体毛坯切取。目前生长得到晶体毛坯最大尺寸为φ20×50mm, 无需退火即可切割。已加工φ5×40mm的激光棒。

(2) 晶体直径控制

引上法生长铝酸镁镧晶体时, 放肩阶段, 在生长参数(拉速、转速和降温速率等)不变

的条件下, 晶体直径不是均匀地增加, 而是取决于熔体流动的状态, 开始时较慢, 后来就迅速增长。当晶体直径增大到某值时, 熔体表面出现一种巡回在晶体周围的涡流状态, 此时采取停拉方法, 待涡流状态减少或消失后, 也就是固液界面的熔体对流稳定时, 重新开始提拉晶体。实践表明, 采取这种方法能有效地克服由于液流转变这一物理机制所造成的晶体直径不可控制急剧增大趋势, 从而减少晶体放肩界面处的应变, 即降低晶体在放肩部引起开裂的可能性。

(3) 晶体光谱及激光试验

La_{1-x}Nd_xMgAl₁₁O₁₉晶体的吸收光谱和晶体中x值与荧光寿命见图2和表1。图3表示

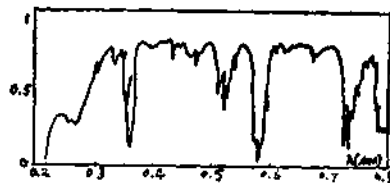


图2 LaMgAl₁₁O₁₉ 晶体光谱特性

表1 La_{1-x}Nd_xMgAl₁₁O₁₉ 晶体x值与荧光寿命的关系

x 值	1	0.33	0.1	0.05	0.01
Nd ³⁺ 离子浓度 W10 ² , cm ⁻³	3.36	1.12	0.34	0.17	0.03
荧光寿命 τ (μs)	27	52	260	360	360

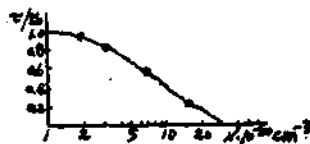


图3 LaMgAl₁₁O₁₉ 晶体的荧光衰减时间与浓度的关系

六方铝酸镁镧晶体中Nd³⁺荧光衰减时间与浓度的关系。从图3和表1中分别可以看出, 晶体中Nd³⁺离子呈现的荧光浓度猝灭相当弱, 适合掺入高浓度的稀土及过渡元素。

目前, 已加工出φ5×40mm的激光棒, 进行激光试验, 获得了57mJ/脉冲的激光输出。

讨 论

综上所述, 对于 $\text{La}_{1-x}\text{Nd}_x\text{MgAl}_{11}\text{O}_{10}$ 晶体的生长初期, 放肩阶段, 由于晶体的直径小或者晶体和坩埚的温度差大, 此时的熔体对流状态以自然对流为主, 所以, 晶体直径根据温度降温程序控制有规律地变化。随着晶体的生长, 直径的增加或温度差的减小, 熔体中的对流也随时间变化, 液流由自然对流占优势的状态过渡到强迫对流占优势的状态, 此时液面的熔体流动出现的是一种反转或混合流形态。由于对流的加强, 把晶体下方温度较低的流体向熔体表面推进, 使界面附近液流强度由强变弱, 晶体和熔体表面之间出现过冷度区域, 在熔体表面就可观察到如上所述的巡回在晶体周围的涡流。此时晶体直径的增大将引起液流速度的急剧减小, 当晶体直径到达一临界值, 液流状态发生翻转, 强度又由弱变强, 使晶体和熔体表面之间的过冷度区域减少, 出现一个相反的缩小直径的反熔过程, 这时我们采取停拉措施, 让液流状态趋于平稳, 即让巡回在晶体周围的涡流减小或消失后, 重新开始引上晶体。实践表明, 在液流翻转前后阶段, 晶体直径有不可控制地急剧增大的趋势, 但认识了液流翻转这个物理机制对钕酸镁镧晶体生长的影响, 就可

(上接第17页)

涉图的变化。这说明此时副腔输出激光频率不变。从而证实了理论计算结论。

用PIN快速光电管和TS-8143存贮示波器测得图6对应的输出激光波形如图8所示。其

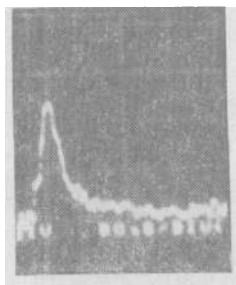


图8 锁定后的激光脉冲波形 (50ns/div)

以正确地调节温控程序控制晶体生长直径。这一方法对减少晶体应力, 避免和消除六方铝酸盐晶体在(001)晶面上的解理是行之有效的。

结 论

(1) $\text{LaMgAl}_{11}\text{O}_{10}:\text{Nd}^{3+}$ 晶体的 Nd^{3+} 分配系数为1, 可掺入 Cr^{3+} 。引人注目的是它可弥补目前的 $\text{YAG}:\text{Nd}^{3+}$ 激光器由于 Nd^{3+} 分配系数小、 Nd^{3+} 浓度不高和 $\text{GSGG}:\text{Nd}^{3+}$, Cr^{3+} 晶体热导性差、原料价格昂贵等不足之处, 是较理想的高效率固体连续激光器用的晶体材料。

(2) 在我们的生长条件下(生长速度为2mm/h, 转速为80rpm), 采取合理的工艺步骤, 可以消除六方铝酸盐单晶在(001)晶面上有相当解理的明显缺点, 已得到平界面形状, 无核心, 无解理, 光学均匀性好的优质晶体。

(3) 目前我们生长得到的钕酸镁镧晶体, 掺 Nd^{3+} 浓度为1~2wt%, 为提高激光输出功率, 可将掺 Nd^{3+} 浓度提高为5wt%。

参 考 文 献

- [1] 石川憲, オプトロニクス58(10) (1986), 51.
- [2] 马笑山等, 紫翠宝石晶体生长与质量, 光学学报, (1986)No. 8, 734.

脉宽约20ns, 测得此时的单纵模输出能量为210mJ。由此求得峰值功率为10.5MW。

最后感谢董沙雷、李洪谱、张凯、刘雪峰、焦树良等同志在实验中给予的大力协助。

参 考 文 献

- [1] Y. K. Park and R. L. Byer, IEEE J. Quantum Electronics, Vol. QE-20, No. 2, 1984, P. 117.
- [2] Richard H. Pantel, Fundamentals of Quantum Electronics, New York, Wiley 1969, p. 39.
- [3] 李庆扬等, 数值分析, 第171页, 1983.
- [4] V. Evthnov and A. E. Siegman, Appl Opt., Vol. 4, 1965, P. 142.