

رشد تک بلور YAG با دو آلایند Ce^{+3} و Nd^{+3}

جهانگیر حسنی بربران*، داود رزاقی، محمد رضا غنی عراقی، اسماعیل جنگجو

چکیده

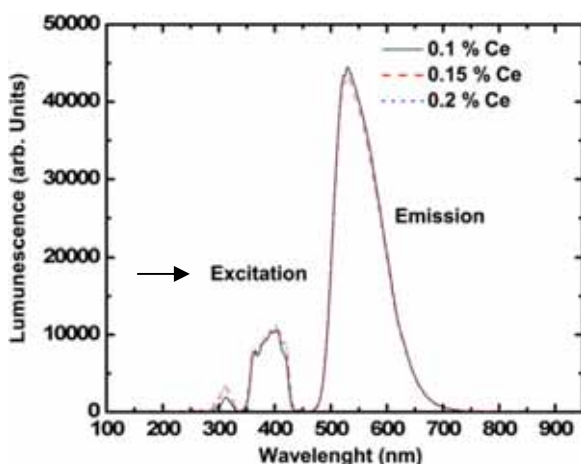
تک بلور YAG همزمان با دو آلایند Ce^{+3} و Nd^{+3} بلور نسبتاً جدیدی است که به عنوان محیط فعال در لیزرهای حالت جامد مورد استفاده قرار می‌گیرد. در این کار هدف رشد این بلور در جهت بلوری [۱۱۱] می‌باشد. برای این منظور از روش چکرالسکی و کوره القایی استفاده شد. سرعت کشش و چرخش به ترتیب ۰/۵ میلی‌متر در ساعت و ۲۴ دور در دقیقه انتخاب شد. پس از رشد موفقیت آمیز این بلور عملیات اپتیکی برش، سایش و پولیش بر روی آن انجام گرفت. با تهیه نمونه‌های مناسب طیف XRD و طیف جذب از نمونه بدست آمد. دو میله لیزر از بلور رشد داده شده تهیه و مورد ارزیابی قرار گرفت.

واژه های کلیدی: رشد بلور، روش چکرالسکی، Ce,Nd:YAG

Ce^{+3} برای درصدهای مختلف آن در YAG مشاهده

۱- مقدمه

می‌شود [۳].



شکل ۱: طیف نشر Ce:YAG با درصدهای مختلف یون آلایند.

در شکل باند برانگیختگی نیز دیده می‌شود [۴].

تک بلور Ce, Nd:YAG در واقع جزو مواد لیزری با طول موج خروجی ۱۰۶۴ نانومتر است که سالها بعد از Nd:YAG و به جهت بالا بردن راندمان آن مطرح شده است. در افزایش توان خروجی در این بلور از دمای ازت مایع تا دماهای بالاتر نقش اساسی را انتقال انرژی $\text{Ce}^{+3} \rightarrow \text{Nd}^{+3}$ بازی می‌کند، دلیل این رفتار مطلوب در نتیجه همپوشانی باند پهن نشر Ce^{3+} (از ۴۸۰ تا ۷۰۰ نانومتر) با بعضی خطوط جذب قوی یونهای Nd می‌باشد [۱-۲]. در شکل ۱ طیف نشر یون

۱ پژوهشکده لیزر و اپتیک، پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای، خیابان

میله لیزر از بلور رشد داده شده تهیه شد و پس از آنیلینگ در اتمسفرهای متفاوت تحت پمپاژ قرار گرفت و انرژی خروجی آنها بدست آمد.

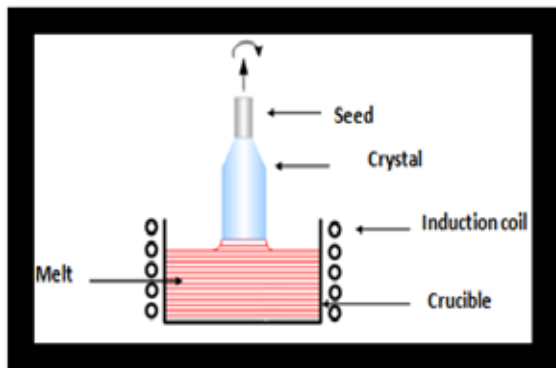
۲- رشد بلور

برای رشد تک بلور Ce, Nd:YAG از اکسیدهای Al_2O_3 , Y_2O_3 , Nd_2O_3 و CeO_2 که به شکل پودر می باشند بعنوان مواد اولیه استفاده می شود. اکسیدهای آلومینیم، یتیم و نئودیمیم محصول کشور چین با درجه خلوص بالای ۹۹/۹۹ درصد می باشند و اکسید سربوم با درجه خلوص ۹۹/۹٪ محصول کشور روسیه است. غلظت نئودیمیم ۴/۵ درصد اتمی و غلظت سربیم ۱ درصد اتمی در مواد اولیه انتخاب شد. این مواد قبل از اینکه بتوانند در کوره رشد بلور مورد استفاده قرار بگیرند باید دو ویژگی پیدا کنند اول اینکه از حالت پودر به حالت کلوخ و حجم کمتر تبدیل شوند تا بتوان آنها را جابجا و در بوتله رشد بلور جا داد. دوم اینکه اکسیدها با هم در حالت جامد واکنش داده و ترکیب واحدی را تشکیل دهند در غیر اینصورت ممکن است در زمان ذوب در داخل کوره رشد بلور به دلیل اختلاف نقاط ذوب چهار اکسید اولیه قبل از ذوب کامل همه مواد یکی از آنها اندکی تبخیر شده و نسبت استئوکیومتری به هم بخورد. براین اساس فرایند تهیه مواد جهت رشد بلور شامل چندین مرحله است: در ابتدای کار جهت خروج مواد فرار، تک تک پودر اکسیدهای مورد نیاز حرارت داده می شوند و سپس خرد شده و الک می شوند در صورت جذب رطوبت در مرحله الک کردن پس از این مرحله و قبل از توزین، با

کاپیل^۱ و همکارانش برای اولین بار افزایش توان خروجی لیزر در میله های Ce, Nd:YAG را در مقایسه با میله های بدون آلاینده دوم یعنی Ce گزارش کردند [۴و۵]. همچنین نتایج تجربی نشان می دهد که در دماهای ۵۰ تا ۱۴۰ درجه سانتیگراد راندمان لیزر بلور Ce, Nd:YAG نسبت به بلور Nd:YAG بالاتر است و این امر اساسا بوسیله مکانیسم تابشی انتقال انرژی $Ce^{+3} \rightarrow Nd^{+3}$ در بلور Ce, Nd:YAG اتفاق می افتد [۶]. این بلور علاوه بر فاصله یابهای کوچک لیزری و هوابرد به دلیل پایداری عالی آن از نظر انرژی خروجی، عرض باریک پالس تولید شده و بالا بودن توان پیک در زمینه لیزرهای زیبایی نیز ارجحیت دارد [۶-۸].

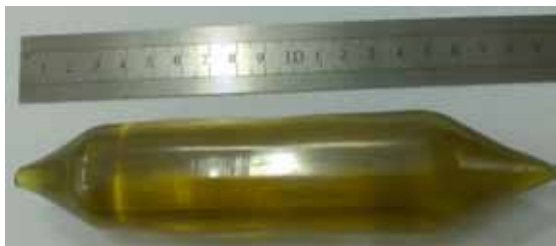
در این کار تک بلور Ce, Nd:YAG به روش چکرالسکی و در کوره القایی رشد داده می شود. این روش با توجه به شرایط حاکم بر آن روشی متداول در رشد بلورهای با کیفیت بالا می باشد. در این بلور از دو آلاینده Ce و Nd بطور همزمان استفاده می شود و از این نظر با بلورهای دیگر مانند Nd:YAG که در آنها با یک آلاینده سر و کار داریم متفاوت می باشد. همچنین با توجه به اینکه هر دوی این عناصر جایگزین بخشی از یونهای Y^{+3} در ساختار YAG می شوند و شعاع یونی آنها بزرگتر از یون یتیم می باشند لذا محدودیت حلالیت بوجود می آید و به مرور غلظت آلاینده ها در مذاب باقیمانده زیادتر می شود و لذا شرایط رشد را سخت تر می کند، ضمنا این امر در تهیه مواد اولیه نیز می بایست در نظر گرفته شود. پس از رشد این بلور دو

می کند و در نهایت به منظور حفظ بلور، کار با کاهش قطر و سرد کردن به پایان می رسد.



شکل ۲: شمایی از سیستم رشد بلور به روش چکرالسکی

در این کار همچنانکه در شکل ۳ مشاهده می شود نهایتاً تک بلور $Ce, Nd:YAG$ با کنترل دقیق به ابعاد ۱۰۵ میلیمتر طول مفید و ۳۹ میلیمتر قطر رشد داده شد.



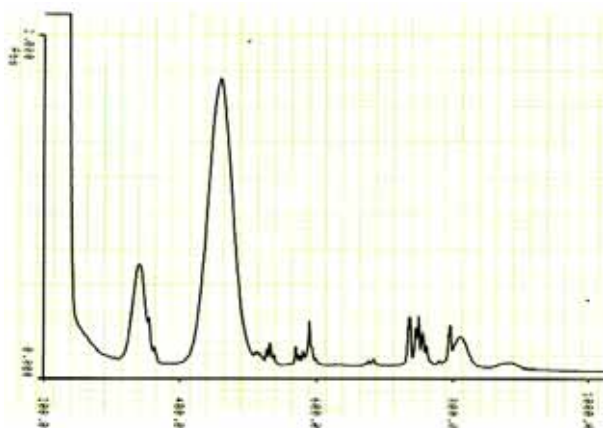
شکل ۳: تک بلور $Ce, Nd:YAG$ رشد داده شده در آزمایشگاه

۳- مشخصه یابی و بررسی کیفیت بلور

بلور رشد داده شده به منظور مشخصه یابی و بررسی دقیقتر، در آزمایشگاه اپتیک تحت عملیات برش، سایش، پولیش و جهت یابی بلوری قرار گرفت. انحراف قابل ملاحظه ای از جهت رشد [۱۱۱] در بلور مشاهده نشد. برای انجام طیفسنجی XRD نمونه پودری از آن تهیه شد. سپس از نظر کیفیت و طیف جذب مورد

حرارت دادن رطوبت جذب شده آنها خارج می شود، توزین مواد بر اساس محاسبات لازم جهت تشکیل ترکیب مورد نظر YAG با ۴/۵ درصد اتمی نئودیمیم و ۱ درصد اتمی سریوم در مواد اولیه انجام می گیرد. پودرهای اکسیدی توزین شده سپس کاملاً مخلوط شده و پرس می شوند. مواد پرس شده در کوره، تحت عملیات زینترینگ قرار می گیرند، عملیات زینترینگ در دمای ۱۳۰۰ درجه سانتیگراد انجام می گیرد. عملیات زینترینگ ضمن اینکه مواد پودری را بصورت توده قابل انتقال در می آورد، سبب انجام واکنش در حالت جامد بین اکسیدها شده و در واقع ترکیب شیمیایی واحدی را که عموماً YAG می باشد حاصل می کند. مواد اولیه زینتر شده، در کوره رشد بلور باردهی می شوند. روش مورد استفاده جهت رشد بلور روش چکرالسکی می باشد و از بوتله از جنس ایریدیم به ابعاد $10 \times 10 \text{ cm}$ در این کار استفاده شد. برای اتمسفر کوره رشد از گاز ازت استفاده شد و سرعت کشش ۰/۵ میلی متر در ساعت و سرعت چرخش ۲۴ دور در دقیقه انتخاب شد. از میله YAG خالص در جهت بلوری [۱۱۱] به عنوان نطفه اولیه استفاده شد. شمایی ساده از سیستم رشد بلور به روش چکرالسکی در شکل ۲ در زیر ملاحظه می شود. رشد بلور پس از آماده سازی مذاب و رسیدن به دمای مناسب با تماس نطفه اولیه با سطح مذاب و همزمان با چرخش و کشش آن آغاز می شود. با کنترل دما به منظور دستیابی به کیفیت بهتر افزایش قطر بلور به تدریج انجام می گیرد و پس از رسیدن به حد اکثر قطر عملیات با قطر ثابت ادامه پیدا

از این نمونه در محدوده ۱۲۰۰-۲۰۰ نانومتر طیف جذب گرفته شد که نتیجه آن در شکل ۶ دیده می‌شود.



شکل ۶: طیف جذب مربوط به نمونه دیسک پولیش شده به ضخامت ۲/۵ میلی‌متر از بلور رشد داده شده Ce,Nd:YAG

همچنانکه در شکل ملاحظه می‌شود طیف جذب این بلور وسیع بوده و بیشترین جذب در ۴۵۹ و ۳۴۰ نانومتر مشاهده می‌شود که مربوط به یونهای Ce^{+3} می‌باشند که با جذب انرژی سپس آن را به یونهای Nd^{+3} منتقل می‌کنند و به این دلیل باعث افزایش راندمان در حالت پمپاژ لامپی می‌شوند.

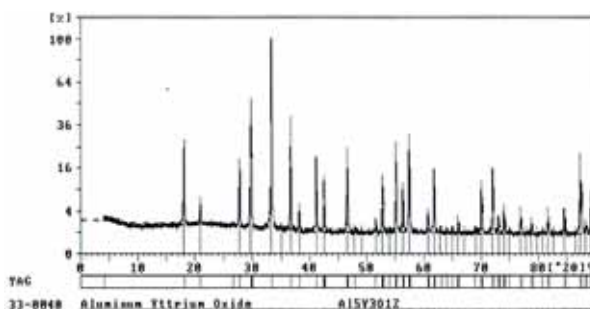
۶- بررسی کیفیت با مشاهده وضعیت core

Core ها صفحات بلوری ناخواسته ای هستند که با توجه به پارامترهای انتخاب شده در هنگام رشد بلورهای YAG در جهت [۱۱۱] در سطح مقطع بلور رشد داده شده ملاحظه می‌شوند. آنها می‌توانند در مرکز بلور در کناره ها و یا جانبی تحت زاویه ۱۲۰ درجه در سطح مقطع خود را نشان دهند. برای مشاهده وضعیت CORE ها دیسک تهیه شده از بلور در زیر دستگاه استرسمیتتر قرار گرفت، همچنانکه در شکل ۷

بررسی نهایی قرار گرفت و در نهایت از آن میله لیزر استخراج و مورد ارزیابی قرار گرفت.

۴- انجام آزمایش XRD

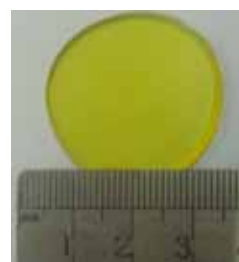
برای انجام آزمایش XRD بر روی بلور رشد داده شده از روش پودری استفاده شد. طیف XRD (شکل ۴) و اطلاعات پیکهای بدست آمده از نمونه پودر تهیه شده از بلور حاصل در محدوده $0 < 2\theta < 90$ بدست آمد. نتایج به دست آمده از این آزمایش نشان‌دهنده تنها تک فاز موجود YAG در آن می‌باشد.



شکل ۴: طیف XRD مربوط به یک نمونه پودری از بلور رشد داده شده

۵- طیف جذب نمونه بلور رشد داده شده

جهت بررسی طیف جذب بلور یک دیسک از قسمت بالای آن به ضخامت حدود ۲/۵ میلی‌متر و قطر ۳۴ میلی‌متر تهیه شد که در شکل ۵ در زیر ملاحظه می‌شود.



شکل ۵: دیسک تهیه شده از قسمت بالای بلور



شکل ۹: چیدمان استفاده شده جهت تست میله‌های
Ce,Nd:YAG

انرژی حاصل برای هر دو میله و همچنین کیفیت پرتو آنها بر اساس اثر آن بر روی فیلم بدست آمد، نتایج کار در اشکال ۱۰ و ۱۱ در زیر نشان داده شده‌اند. انرژی حاصل از میله در حالت آنیل در محیط ازت نسبت به هوا بیشتر نشان می‌دهد که برابر است با:

$$546 - 516 = 30 \text{ mJ}$$



شکل ۱۰: اثر پالس لیزر Ce Nd:YAG آنیل شده در محیط ازت
با انرژی حاصل $E=546 \text{ mJ}$

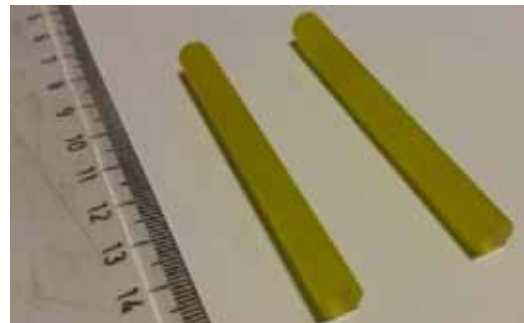
ملاحظه می‌شود فقط CORE مرکزی در آن وجود دارد و اثری از CORE های جانبی و لبه‌ای در آن دیده نمی‌شود که این امر نشانگر کیفیت بالای آن می‌باشد.



شکل ۷- وضعیت CORE ها در دیسک تهیه شده از بلور

۶- تست کیفیت پرتو و انرژی حاصل از میله لیزرو تاثیر شرایط آنیلینگ بر آن

به منظور تست نهایی بلور دو عدد میله یکسان از بلور رشد داده شده تهیه و سپس تحت عملیات آنیلینگ در دو محیط هوا و ازت در دمای حدود ۱۲۰۰ درجه سانتیگراد قرار گرفت. این میله‌ها بدون لایه‌نشانی و دارای طول ۷۰ میلیمتر و قطر ۶ میلیمتر بودند (شکل ۸).



شکل ۸: دو عدد میله تهیه شده از بلور Ce,Nd:YAG

برای تست میله‌ها از چیدمان زیر استفاده شد (شکل ۹). در این مرحله هر دو میله تحت شرایط یکسان پمپاژ شد.

در دیسک تهیه شده مشاهده شد، وجود فقط CORE مرکزی نشاندهنده شرایط مطلوب رشد بلور بود. دو عدد میله لیزر یکسان از بلور حاصل تهیه شد یکی از آنها در محیط هوا و دیگری در محیط ازت آنیل شد، کار آبی آن دو میله در سیستم لیزر بررسی شد، میله آنیل شده در محیط ازت نتیجه بهتری در بر داشت، دلیل این امر می‌تواند اکسیداسیون بخشی از یون‌های Ce^{+3} به یون‌های Ce^{+4} در میله آنیل شده در هوا باشد که باعث کاهش غلظت یونهای Ce^{+3} در میله می‌شود.

مراجع

- [1] Mares J., Jacquier B., Pedrini C., Boulon G., "Energy transfer mechanisms between Ce^{3+} and Nd^{3+} in YAG : Nd, Ce at low temperature", Revue Phys. Appl., 22 (1987), pp. 145-152.
- [2] Li Y. et al., "Intense 1064 nm emission by the efficient energy transfer from Ce^{3+} to Nd^{3+} in Ce/Nd co-doped YAG transparent ceramics", Optical Materials, 32 (2010), pp. 1223-1226.
- [3] Varney C. R., Mackay D. T., Reda S. M., Selim F. A., "On the optical properties of undoped and rare-earth-doped yttrium aluminium garnet single crystals", J. Phys. D: Appl. Phys., 45 (2012), 015103 (6pp)
- [5] Kvapil J. et al., "Laser Properties of YAG: Nd, Cr, Ce", Czech. J. Phys. B, 34 (1984), pp. 581-583.
- [6] Kvapil J. et al., "The luminescence efficiency of YAG:Ce phosphors", Czech. J. Phys. B, 30 (1980), pp. 185-192.
- [7] Gang Z. et al., "Mechanism of compact solid state laser with increasing efficiency at the higher surrounding temperature", SPIE Vol.



شکل ۱۱: اثر پالس لیزر Ce:Nd:YAG آنیل شده در محیط هوا با انرژی حاصل $E=516 \text{ mJ}$

همچنین از مقایسه نتایج حاصل از اثر پرتو بر فیلم متوجه می‌شویم که اثر حاصل از پرتو میله آنیل شده در ازت متقارن تر و دارای مرز صاف تر از اثر میله آنیل شده در هوا می‌باشد و لذا کیفیت پرتو حاصل از آن بهتر است. علاوه بر این انرژی حاصل از میله آنیل شده در ازت بیش از انرژی حاصل از میله آنیل شده در محیط هوا می‌باشد دلیل این امر را می‌توان به شرایط اکسیدی هوا و تغییر ظرفیت بخشی از یون‌های سریم از حالت مطلوب بصورت $Ce^{+3} \rightarrow Ce^{+4}$ و کاهش یونهای سه ظرفیتی سریم در حین آنیلینگ در هوا مرتبط دانست.

۷- نتیجه‌گیری

بلور Ce, Nd:YAG با ابعاد ۱۰۵ میلیمتر طول مفید و ۳۹ میلیمتر قطر با موفقیت رشد داده شد. آزمایش XRD به روش پودری بر روی نمونه محصول انجام گرفت که نشاندهنده تک فاز YAG در آن بود. طیف جذب نمونه دیسک بریده شده از بلور اندازه‌گیری شد که نشاندهنده دامنه جذب وسیع آن بوده و لذا آنرا برای پمپاژ لامپی مناسب‌تر ساخته است. وضعیت CORE

3549, pp. 128-133. downloaded from:
[http://proceedings.spiedigital
library.org/](http://proceedings.spiedigitallibrary.org/)on 05/11/2015.

[8] Meng J. X. et al., “*Efficient energy transfer for Ce to Nd in Nd /Ce codoped yttrium aluminum garnet*”, Appl. Phys. Lett., 93, (2008), 221908.

[9] Lv Y. et al., “*Electro-opticalcavity-dumped Ce:Nd:YAG laser for aesthetic medicine*”, Optics & Laser Technology, 44 (2012), pp. 2432–2435.