

文章编号: 1001-3806(2007)02-0141-03

掺杂 YAG 和 GGG 激光晶体热导率研究

王保松, 江海河*, 贾先德, 张庆礼, 孙敦陆, 殷绍唐
(中国科学院 安徽光学精密机械研究所, 合肥 230031)

摘要: 为了研究不同掺杂 YAG 和 GGG 激光晶体的导热特性, 采用瞬态脉冲法测量了 273K~393K 温度范围内自己生长的不同掺杂 YAG 和 GGG 激光晶体的热导率, 并建立了实验样品温度场模型, 推导出热导率对温度的函数关系, 得到晶体热导率随温度变化曲线, 这与实验测量结果基本相符。实验结果表明, 晶体热导率随温度升高呈下降趋势, YAG 激光晶体经 Yb 离子掺杂后热导率值降低, GGG 晶体热导率随掺杂 Nd 离子浓度的增加而降低, 并从理论上对实验结果进行了解释。

关键词: 材料; 热导率; 测量研究; 激光晶体

中图分类号: O736 **文献标识码:** A

Study on thermal conductivity of the YAG and GGG laser crystal

WANG Bao-song, JIANG Hai-he, JIA Xian-de, ZHANG Qing-li, SUN Dun-lu, YIN Shao-tang

(Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

Abstract: For the sake of studying thermal conduction characteristic of different doped YAG and GGG laser crystals, the thermal conductivities of different doped YAG and GGG laser crystal generated from 273K to 393K were measured by making use of instantaneous measuring method, and the temperature field model of the experimental sample was established, the function of thermal conductivity to the temperature was deduced. The obtained conductivity/temperature curves almost conformed with the experimental results. The experimental results make clear that the thermal conductivity of the laser crystal decline to the temperature, the thermal conductivity of YAG laser crystal declines after doped with Yb ions, the thermal conductivity of the GGG laser crystal declines with the rising of the doped Nd ions concentration. Finally, the experimental results were theoretically explained.

Key words: materials; thermal conductivity; measurement study; laser crystal

引 言

迄今, 在工业材料加工和军事应用中, 掺杂 YAG 晶体仍然是固体激光器普遍使用的晶体材料。近年来, GGG 系列的晶体已成为激光晶体材料领域一个重要发展方向。与 YAG 类似, 钆石榴石中的 GGG 系列晶体 $Gd_3Ga_5O_{12}$ (GGG), $Gd_3Sc_2Ga_5O_{12}$ (GSGG) 是重要的激光基质^[1]。文献 [2] 和文献 [3] 中对 Yb:YAG, Nd:GGG 激光器性能进行了报道, 文献 [4] 中对 Nd:GGG 激光晶体缺陷进行了报道。基于激光晶体独特用途, 热导率成为其重要的热物理性质, 热导率的测量相对比较困难, 其测量就成为传热学研究的一个重要方向。目前, 测量固体材料热导率的方法可分为稳

态法和非稳态法, 作者采用的瞬态脉冲法具有受外界环境影响小、测量准确、重复性高等优点。文献 [5] 中报道了 1K~300K 温度范围内 YAG 和 GGG 的热导率, 作者测量了 273K~393K 温度范围内自己生长的不同掺杂 YAG 和 GGG 晶体的热导率, 并通过温度场建模和热传导的固体理论及微观机制对实验结果进行了理论分析和解释。

1 实验原理

实验中采用的测量系统为美国 Quantum Design 公司生产的 physical property measurement system (PPMS) 测量仪器。样品为自己用提拉法生长的不同掺杂 YAG 和 GGG 激光晶体, 尺寸为 10mm × 4mm × 2.5mm。铜片电极通过环氧胶粘于样品两端 (见图 1), 将样品置于系统较高真空 (达 1.33×10^{-2} Pa) 容器内, 电极与加热器、温度探测器相连。采用脉冲加热方式, 热脉冲持续时间为 6min, 间隔为 8s; 测量过程中样品温度准连续上升, 升温速度为 0.75K/min, 平均测量时间为 3h。

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (60478025; 50472104)

作者简介: 王保松 (1981-), 男, 硕士研究生, 主要从事激光材料、激光技术方面的工作。

* 通讯联系人。E-mail: hjjiang@aofm.ac.cn

收稿日期: 2006-03-20; 收到修改稿日期: 2006-05-18

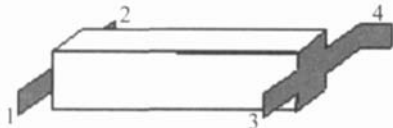


Fig 1 Structure of two lines attachment

测量原理如图 1所示,系统选择最合适的脉冲功率和脉冲宽度对样品 1端进行加热,对 3端进行冷却控制,同时测量样品 2,4端的温度;根据传热量和温度计示数,通过导热方程计算样品热导率函数,最终得出热导率随温度变化曲线。

根据测量原理建立了理论模型如图 2所示: T_h , T_c 分别为热、冷端温度计示数, T_l , T_r 为样品左右两端

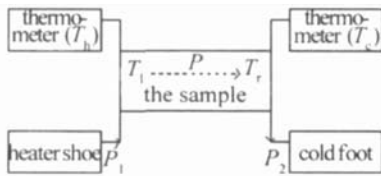


Fig 2 Sketch map of the model

温度。热端加热功率为 P_1 ,冷端吸收功率为 P_2 ,样品内热流功率记作 P , P_1 和 P_2 由系统实时监测。根据理论模型给出导热方程的微分形式^[6]和边界条件:

$$\begin{cases} \frac{\partial}{\partial t}(\rho c T) = \nabla(\kappa \nabla T) + q_v \\ x = 0 \text{ 时, } T = T_l, q_v = \frac{P_1 - K_1(T_l - T_h)}{A} \\ x = l \text{ 时, } T = T_r, q_v = \frac{P_2 - K_2(T_r - T_c)}{A} \end{cases} \quad (1)$$

式中, ρ 是材料密度, c 是比热容, κ 为热导率, q_v 是体积发热率;样品长 l ,截面积为 A , K_1 , K_2 分别为左右两端电极的热传导。测量过程中内部温差变化不大,认为温度对于坐标的二阶微分变量近似为 0。温度计示数 T_h , T_c 随时间变化不大,忽略 dT_h/dt , dT_c/dt 两项影响。根据以上条件通过 (1)式求得样品两端温差:

$$\Delta T = T_h - T_c + \Delta T_1 - \Delta T_2 + \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) - \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \quad (2)$$

式中, $\Delta T_1 = \frac{P_1}{K_1}$, $\Delta T_2 = \frac{P_2}{K_2}$, $\tau_1 = A\rho c/K_1$, $\tau_2 = A\rho c/K_2$ 。

(2)式中, ΔT 仅是时间 t 的函数,其余量均为可知量。热传导定义式 $K = P/\Delta T$, P 为热流功率,由于通过电极传导给温度计的热流量很小, P 可用 P_1 代替,另外考虑了样品辐射的因素,得到:

$$K = (P_1 - P_m) / \Delta T \quad (3)$$

样品辐射功率表达式^[7] $P_m = \sigma \times S \times \epsilon \times (T_1^4 - T_2^4) / 2$, ϵ 为样品热辐射系数取 0.01, S 为表面积, σ 为斯忒藩-玻耳兹曼常数, T_1 , T_2 分别为样品平均温度和环境温度。通过热导率与热传导之间的关系式 $\kappa = K \times l/A$, 可求得样品的热导率。

2 实验结果

测量了 273K~393K温度范围内不同掺杂 YAG 和 GGG激光晶体的热导率,实验测量结果及其标准偏差见图 3,测量结果的最大标准偏差为 0.17976,实验仪器测量精度为 5%;理论模型计算曲线见图 4。图 3、图 4中的掺杂浓度为原子数分数比例。

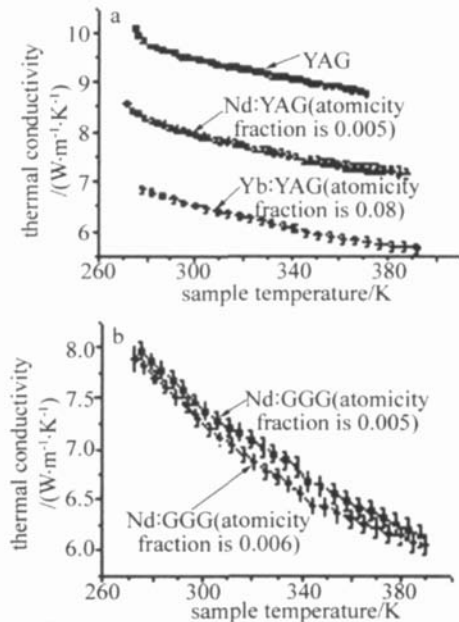


Fig 3 Thermal conductivity of laser crystal of experimental results a—YAG, Yb YAG and Nd YAG b—Nd GGG

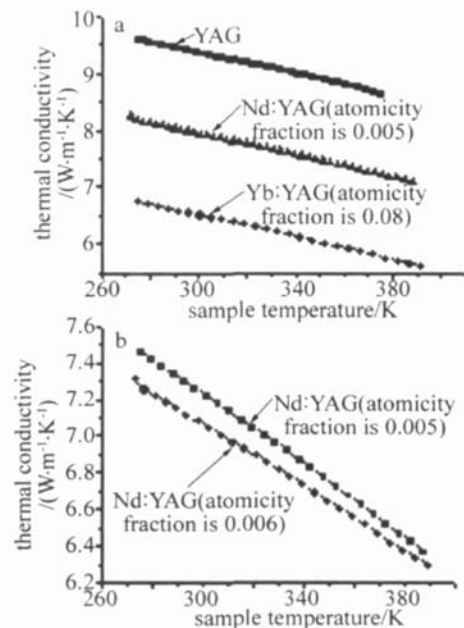


Fig 4 Thermal conductivity of laser crystal of theoretic results a—YAG, Yb YAG and Nd YAG b—Nd GGG

3 实验分析

图 3、图 4 中,实验测量和理论计算曲线基本吻合,图 4中曲线相对平滑。室温测量数据与文献参考

Table 1 Contrast of the experimental results with the reported at room temperature

atomicity fraction of sample (dopant atomicity fraction)	YAG	Yb YAG(0.08)	Nd YAG(0.005)	Nd GGG(0.005)	Nd GGG(0.006)
thermal conductivity ($W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$) (at 300K)	9.48	6.52	7.94	7.24	5.82
value of references (dopant atomicity fraction) ($W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$) (at 300K)	10.3 ^[8]	7 ^[9] (0.08)	13 ^[10] (0.011)	9 ^[11] (>0.02)	9 ^[11] (>0.02)

值对比列于表 1 内,掺杂浓度为原子数分数掺杂比例。

图 3、图 4 中热导率曲线随温度上升均呈下降趋势。根据热传导的固体理论,绝缘体主要靠晶格导热,激光晶体就属于这种情况。声子是晶格振动的能量量子,声子运动是热传导的微观机制。热导率的微观表达式: $\kappa = \frac{1}{3} c_v \lambda \bar{v}$, 其中 c_v 是比定容热容, λ 为声子平均自由程, \bar{v} 为声子速度。热导率随温度变化主要受到声子平均自由程的影响,自由程随温度有两种变化趋势:低温 ($T \ll \Theta_D$) 下有 $\lambda \propto e^{\Theta_D/T}$; 高温 ($T \gg \Theta_D$) 下有 $\lambda \propto 1/T$ 。实验测温范围属于高温情况,因而热导率曲线随温度上升呈下降趋势。

在图 3a 和图 4a 中, YAG 晶体经掺杂后热导率明显下降。掺杂的 Yb^{3+} 和 Nd^{3+} 代替 YAG 中 Y^{3+} 的位置, Yb, Nd 和 Y 的原子量分别为 173.04, 144.24 和 88.91, Yb^{3+} , Nd^{3+} 和 Y^{3+} 离子半径分别为 0.086nm, 0.1nm 和 0.089nm。Yb 和 Nd 的原子量远大于 Y, Yb^{3+} 离子半径比 Y^{3+} 小, Nd^{3+} 离子半径比 Y^{3+} 大。YAG 经 Yb^{3+} 掺杂后, 导致掺杂离子周围密度增加, 格点质量均匀程度降低, 有序度下降, 使得晶体热导率降低。YAG 中掺 Nd^{3+} 时, Nd 原子量远大于 Y, Nd^{3+} 离子半径也比 Y^{3+} 略大, 两种变化会使得掺杂离子周围密度呈相反的变化趋势, 结果都会引起晶体的有序度降低, 使得热导率减小, 这与实验结果相符。

在图 3b 和图 4b 中, 按原子数分数掺杂 0.006 的 Nd GGG 晶体热导率低于掺杂原子数分数为 0.005 的情况。掺杂后 Nd^{3+} 代替晶体中 Gd^{3+} 的位置, Nd 和 Gd 的原子量分别为 144.24, 157.25, Nd^{3+} 和 Gd^{3+} 离子半径分别为 0.1nm, 0.094nm; Nd 原子量比 Gd 的小, Nd^{3+} 离子半径却比 Gd^{3+} 的大。掺入的 Nd^{3+} 会引起晶格的畸变, 掺杂浓度增加时, 导致晶体内部畸变增大, 有序度降低, 最终导致晶体热导率下降。

4 结 论

在 273K~393K 较宽的温度范围内, 用瞬态脉冲法测量了自己生长的不同掺杂 YAG 和 GGG 激光晶体

热导率, 得到热导率随温度变化曲线, 结果表明: 在测量范围内晶体热导率随温度上升呈下降趋势; YAG 晶体经 Yb^{3+} 掺杂后热导率值下降; GGG 晶体热导率随掺杂 Nd^{3+} 浓度的增加而降低。并对实验进行了理论分析, 建立了实验样品温度场模型, 推导出热导率对温度的函数关系, 理论计算曲线与实验测量结果基本相符。YAG 和 GGG 晶体的热导率随温度的变化趋势主要受到声子平均自由程的影响, 晶体经掺杂后热导率降低是杂质离子的掺入使得晶格畸变导致有序度降低的结果。

参 考 文 献

- [1] ZHANG Q L, YN Sh T, WANG A H *et al* Research progress of the laser crystal GGG species [J]. Chinese Journal of Quantum Electronics, 2002, 19 (6): 481~484 (in Chinese).
- [2] ZHANG Q L, JIANG H H, YN Sh T Properties of LD edge-pumped Yb YAG laser [J]. Laser Technology, 2005, 29 (1): 82~86 (in Chinese).
- [3] JIANG H H, JIA X D, YUAN Z J *et al* Lasing features of flash lamp pumped Nd^{3+} GGG Laser [J]. Chinese Journal of Quantum Electronics, 2003, 20 (6): 648~650 (in Chinese).
- [4] WANG Zh B, ZHANG Q L, SUN D L *et al* Study on defects of Nd GGG laser crystal [J]. Chinese Journal of Quantum Electronics, 2005, 22 (4): 574~578 (in Chinese).
- [5] KRUPKE W F, SHINN M D, MARDN J E *et al* Spectroscopic, optical, and thermomechanical properties of neodymium- and chromium-doped gadolinium scandium gallium garnet [J]. Journal of the Optical Society of America, 1986, B3 (1): 102~113.
- [6] YANG Q Sh, PU B R. Advanced heat transfer [M]. Shanghai: Shanghai Jiaotong University Press, 1996. 6 (in Chinese).
- [7] JIA L, FANG Zh H, QIAN X H. Advanced heat transfer [M]. Beijing: Advanced Education Press, 2003. 254 (in Chinese).
- [8] SLACK G A, OLIVER D W. Thermal conductivity of garnets and phonon scattering by rare-earth ions [J]. Phys Rev, 1971, B4 (2): 592~609.
- [9] CHENA IS S, DRUON F, BALEMBOIS F *et al* Diode-pumped Yb GGG laser: comparison with Yb YAG [J]. Optical Materials, 2003, 22 (2): 99~106.
- [10] PFISTERER C, WEBER R, WEBER H P *et al* Thermal beam distortions in end-pumped Nd YAG, Nd GSGG, and Nd YLF rods [J]. IEEE J Q E, 1994, 30 (7): 1605~1615.
- [11] JIANG B X, ZHAO Zh W. Room temperature absorption and emission spectra of Nd^{3+} Gd₃Ga₅O₁₂ crystal [J]. Journal of Synthetic Crystal, 2004, 33 (4): 581~585.