

内 部
77008

电子技术会议录

——激光基质晶体生长技术专辑

第四机械工业部第一研究所

一九七七年十月

前 言

四机部激光情报网激光基质晶体技术交流会于1977年7月1~9日在济南召开。出席这次会议的单位有47个, 109名代表。这是一次深揭猛批“四人帮”的声讨大会; 是大学大庆, 树雄心立壮志, 攀登科学技术高峰, 赶超世界先进水平, 交流经验互相学习的大会。大会交流进行三天, 小会交流讨论三天, 会上总共听取了三十五篇报告。主要内容包括: 激光基质晶体基础理论、钇铝石榴石工艺、铝酸钇工艺、新的激光基质晶体探索、激光晶体检测和激光晶体生长自动控制系统等研究工作。这些报告基本上反映了当前国内激光基质晶体工作的进展情况。这几年来, 虽然科研工作受到“四人帮”的干扰和破坏, 但是在毛主席革命路线指引下, 象其他科研工作一样, 激光基质晶体研究工作也取得了显著的进展, 为工农业生产 and 国防建设作出了一定的贡献。

为便于从事激光基质晶体研究的广大工人、科技人员和干部更好地利用这些成果和经验, 特将这次会议资料进行选编。由于篇幅所限, 本会议资料选编仅选入二十余篇报告。这些报告大部分是生产和研制阶段的报告, 其中有些报告所涉及的问题深度和广度都还不够, 尚有待今后继续不断地改进和完善。因此, 有些报告中所谈到的一些观点和数据, 仅供读者参考。由于时间仓促, 选编者水平有限, 缺点错误难免, 望读者批评指正!

编 者

1977年7月

目 录

1. 激光晶体理论研究——光谱性能与结构因素的关系……………福建物构所 (1)
2. 提拉法生长 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ 单晶的光学不均匀性问题……………山东大学 (9)
3. 掺铈钇铝石榴石大晶体的试制汇报……………上海东方仪表厂、上海激光站、
上海光机所三结合试制小组 (20)
4. $\text{YAG}:\text{Nd}^{3+}$ 单晶中的气泡夹杂……………五机部209所 (27)
5. 关于 $\text{YAG}:\text{Nd}$ 晶体内存在的各向异性……………安徽光机所 (36)
6. 电阻炉 $\text{Nd}:\text{YAG}$ 的散射损失和消光比……………安徽光机所 (40)
7. 用引上法拉制 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ 单晶中加入过量 Al_2O_3 的作用……………华中工学院 (50)
8. 用引上法在石墨电阻炉中生长YA系列激光晶体材料的化学问题的
研究……………吉林应化所 (55)
9. 沉积石墨加热器在 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ 晶体生长工艺中的应用……………鞍山金属材料厂 (60)
10. 钼酸钇(YAP)单晶的色心……………吉林应化所 (65)
11. $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 晶体激光偏振性的探讨……………福建物构所 (76)
12. 五磷酸铈单晶生长条件探索……………山东大学 (82)
13. $\text{Nd}:\text{YAG}$ 静态激光测试研究……………四机部1411所 (87)
14. 关于 $\text{YAG}:\text{Nd}^{3+}:\text{LiNbO}_3$ 晶体的质量检验问题……………五机部209所 (93)
15. 电子称重法YAG晶体等径生长的自动控制……………南京大学 (101)
16. 用中频逆变器作电源生长 $\text{Nd}:\text{YAG}$ 晶体……………四机部1411所 (108)
17. 温度程序控制生长YAG单晶……………安徽光机所 (114)
18. 热偶真空规用于电阻加热控制YAG的稳压控制……………五机部209所 (119)
19. 铈在钼酸钇激光晶体中及铈钇在钼酸钇上转换晶体中的光谱……………吉林应化所 (124)

激光晶体机理研究—光谱性能与结构因素的关系

中国科学院福建物质结构研究所 罗遵度

一、引言

十多年来,实现激光发射的晶体材料上百种之多,发表了不少关于晶体中激活离子的能级、光谱以及激光性能与晶体结构之间关系的文章。但是,这一领域里的基础研究仍然赶不上实际的需要。许多重要性能参数与基质晶体的空间结构、化学键特性、离子半径等结构因素之间一直缺乏明确的关系,从而不能给新品种材料的研制提供充分的理论根据。本文用局域模型处理了激活离子电子跃迁与晶格振动(声子)的相互作用,指出荧光转换效率与基质晶体离子电负性,离子半径等结构因素之间的关系,并根据光谱线宽理论和声子参予的离子间能量转移理论探讨了吸收光谱及荧光光谱线宽和浓度猝灭效应与上述结构因素的关系。

二、多声子无辐射跃迁的局域模型理论

我们以稀土离子激活的晶体为研究对象,由于这里所讨论的电声子耦合是一种弱耦合^[1],完全可以把研究范围极限在以激活离子为中心的配位多面体内,主要研究这个多面体各顶点上阴离子振动对激活离子4f电子跃迁的影响。但是我们既考虑了配位多面体内的键特性,又考虑了邻接多面体的键特性对所讨论多面体的影响。

晶格振动与激活离子中4f电子的相互作用可用如下哈密顿量描述^[1]

$$H_{int} = \sum_j \frac{\partial V(\vec{r})}{\partial R_j} \Delta R_j \quad (1)$$

其中 R_j 是配位多面体内第 j 个配位离子中心的坐标, $V(\vec{r})$ 是坐标 $\vec{r}$ 处的4f电子与 Z 个配位离子的相互作用势能。不同形式的多声子跃迁理论导出不同的跃迁几率表示式,但它们都能近似地说明一个实验事实:多声子无辐射跃迁几率能级间隙之间存在着指数关系^[2],简单表示如下

$$W = C \exp[-\alpha \Delta E] = C \exp[-\alpha(h\omega_{eff})p] \quad (2)$$

$p = \frac{\Delta E}{h\omega_{eff}}$ 是跃迁过程中发射的声子数, ω_{eff} 是声子的有效频率。上式也可以写成

$$W = C \varepsilon^p \quad \varepsilon = \exp[-\alpha(h\omega_{eff})] \ll 1 \quad (3)$$

ε 称为电声子耦合常数。式(3)中 C 和 ε 都是电声子相互作用强度的递增函数。描述这种

合强度的物理量是式(1)的矩阵元。结合本文的目的,根据量子力学对应原理,只要用半

经典的方法考察量 $\sum_j \frac{\partial V(\vec{r})}{\partial R_j} \Delta R_j$ 就可了。

先讨论一下 ΔR_j 平均值大小的问题。考虑中心离子 C 与某一配位离子 L_i 组成的一维谐振子。势能平均值 $= \frac{1}{2} \mu \omega^2 (\Delta R_j)^2 =$ 动能平均值 $= \frac{1}{2} KT$, μ 是振子的折合质量,根据本文所讨论的问题, ω 应为波矢 $\vec{k} \rightarrow 0$ 的光频支声子频率,可以求得^[3]

$$\omega^2 = \frac{2}{\mu} \left. \frac{\partial^2 u}{\partial R_j^2} \right|_{R_j = R_{j0}}$$

所以 $\Delta R_j = \pm \frac{(KT)^{1/2}}{\left[2 \left(\frac{\partial^2 u}{\partial R_j^2} \right)_{R_j = R_{j0}} \right]^{1/2}}$ 式中 u 是离子晶体中最近邻离子间的作用势能,可

写成^[3]

$$u = \lambda \exp(-R_j/\rho) \frac{qQ_j}{R_j}$$

λ 和 ρ 都是表示离子间排斥作用的常数, q 是中心离子的电荷, Q_j 是第 j 个配位离子的电荷,由

此可求得 $\left. \frac{\partial^2 u}{\partial R_j^2} \right|_{R_j = R_{j0}} = \frac{qQ_j}{R_{j0}^3} \left[\frac{R_{j0}}{\rho} - 2 \right]$, 所以

$$\Delta R_j = \pm R_{j0}^{3/2} \left[qQ_j \left(\frac{R_{j0}}{\rho} - 2 \right) \right]^{-1/2} (KT/2)^{1/2} \quad (5)$$

现在讨论如图 1 所示对称振动模 Γ 的作用,这种模对无辐射跃迁几率贡献最大^[1]。对于这些模,可以认为每一个配位离子的振动幅度和离开或靠近中心离子的方向都一致,并假设 Z 个配位离子都是相同的,与中心离子的关系是对称的,则

$$H_{int} = Z \frac{\partial V(\vec{r})}{\partial R_j} \Delta R_j \quad (6)$$

对于非全对称振动模,某些配位离子上的 R_j 与 ΔR_j 的方向相垂直,在一级近似下可以认为 $\frac{\partial V(\vec{r})}{\partial R_j} = 0$ 。另外有一些配位离子振动方向恰好是一个远离中心离子另一个靠近中心离

子,使得 $\frac{\partial V(\vec{r})}{\partial R_j} \Delta R_j + \frac{\partial V(\vec{r})}{\partial R_i} \Delta R_i = 0$, 所以对非全对

称振动模 $H_{int} = (Z-n) \frac{\partial V(\vec{r})}{\partial R_j} \Delta R_j \quad 0 < n < Z \quad (7)$

下面讨论两个问题

1. 阴离子半径大小对电一声子耦合强度的影响

激活离子的 $4f$ 电子受周围配位离子作用的势能 $V(\vec{r})$ 在点电荷下可展成^[4]

$$V(\vec{r}) = \sum_j eQ_j / |\vec{r} - \vec{R}_j| \quad (8)$$

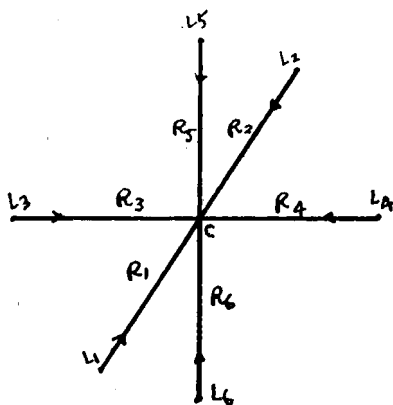


图 1 全对称振动模示意图

其中 Q_j 是第 j 个配位离子的有效电荷。对球谐函数展开后

$$V(\vec{r}) = \sum_l \sum_{m=-l}^l A_l^m r^l Y_l^m(\vec{r}) \quad (9)$$

$Y_l^m(\vec{r}) \equiv Y_l^m(\theta, \varphi)$, r, θ, φ 是所讨论4f电子的坐标

$$A_l^m = \sum_j \frac{4\pi}{(2l+1)} \frac{Q_j}{R_j^{l+1}} (-1)^m Y_l^{-m}(\vec{R}_j) \quad (10)$$

$Y_l^m(\vec{R}_j) \equiv Y_l^m(\theta_j, \varphi_j)$, R_j, θ_j 是第 j 个配位离子中心的坐标。综合上述表式, 注意到晶格动力学中的 R_j 即为晶格场理论中的 R_j , 则

$$\begin{aligned} \text{Hint} = & \left[\frac{KT}{2q(R_j/\rho-2)} \right]^{1/2} (Z-n) \sum_l \sum_m (-1)^{m+1} \\ & \frac{4\pi(l+1)}{2l+1} \frac{Q_j^{1/2}}{R_j^{l+\frac{1}{2}}} r^l Y_l^m(r) Y_l^m(\vec{R}_j) \end{aligned} \quad (11)$$

上式对全对称振动模 $n=0$, 非全对称振动模则 $0 < n \leq Z$ 。和式中各项的绝对值都随 R_j 的变大而减小, 它表示随着 R_j 的加大, 电声子耦合强度变小。对于激活离子已选定的情况 R_j 的差异产生于阴离子半径大小的差异, 阴离子半径愈大, 电声子耦合强度愈小。

2. 基质晶体键特性对电声子耦合强度的影响

讨论以激活离子为中心的配位多面体。激活离子电荷为 q , 配位数为 Z 。完全离子性的情况是 q 个电子完全转移到 Z 个配位离子上, 没有公有化电子存在。若有一定共价键成份, 键电子的分子轨函可写成

$$\psi_B = \lambda \psi_C + \sum_{j=1}^Z C_j \psi_L(j) \quad (12)$$

$\lambda \ll 1$ 完全离子性对应于 $\lambda = 0$

式(12)所表示的电荷分布 $\lambda \psi_C$ 部分对 $V(\vec{r})$ 的贡献 $V_C(\vec{r})$ 可表示为

$$\begin{aligned} V_C(\vec{r}) = & \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{4\pi}{2l+1} \frac{\lambda^2}{r^{l+1}} \left\{ \int_0^r \int \int \theta_{p'} \int \phi_{p'} \psi_C^*(r_1) \psi_C(r_1) Y_l^m(\theta_{p'}, \phi_{p'}) \right. \\ & d\tau_1 \left. \right\} Y_l^m(\theta_{p'}, \phi_{p'}) + \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^l \frac{4\pi \lambda^2}{2l+1} r^l \left\{ \int_r^{\infty} \int \int \theta_{p'} \int \phi_{p'} \frac{\psi_C^*(r_1) \psi_C(r_1)}{r_1^{l+1}} \right. \\ & \left. Y_l^m(\theta_{p'}, \phi_{p'}) d\tau_1 \right\} Y_l^m(\theta_{p'}, \phi_{p'}) \end{aligned}$$

上式 P 点是4f电子坐标, P 点是所要计算的 ψ_C 电子的坐标。显然 $\frac{\partial V_C(\vec{r})}{\partial R_j} = 0$, 也即 ψ_C 所表

示的这部分电荷分布对电声子耦合是没有贡献的。除掉这部分电荷,其余的 $q(1-\lambda^2)$ 电荷我们仍然在点电荷近似下,认为是对称地分布在 Z 个配位离子上,则第 j 个配位离子总的有效电荷为

$$Q_j = Q_i + \frac{q}{Z}(1-\lambda^2) \quad (13)$$

Q_i 是邻接多面体中阳离子对 R_j 配位离子贡献的总电荷,将同样的讨论应用于这些多面体可知,这些邻接多面体中离子性成份的减小(共价键成份增大)也使 Q_j' 变小。把式(13)与(11)结合起来,则

$$H_{int} = \sum_l \sum_m F_l^m \left[(Z-n)Q_j' + q\left(1-\frac{n}{Z}\right)(1-\lambda^2) \right]^{\frac{1}{2}} \\ F_l^m = \left[\frac{KT}{2q(R_j/\rho-2)} \right]^{\frac{1}{2}} (-1)^{m+1} \frac{4\pi(l+1)}{2l+1} \frac{r^l}{R_j^{l+\frac{1}{2}}} Y_l^m(\vec{r}) Y_l^{-1}(\vec{R}_j) \quad (14)$$

参数 $\rho \approx 0.3 \times 10^{-8}$ 厘米^[3]是一个对晶体离子性变化不敏感的参数,我们在讨论中近似地认为是一个常数。

晶体离子性的大小可以用^[9]

$$I = \Delta X \frac{R_c}{R_a} \quad (15)$$

度量,式中 ΔX 是阴阳离子电负性差值, $\frac{R_c}{R_a}$ 是阴阳离子的半径比。不少激光基质晶体是比较

复杂的多元体系,基质晶体中有不同阳离子为中心的多面体,我们可分别求出几个不同的 I 值。对激光性能影响最大的是以激活离子为中心的多面体以及邻接的多面体。分析式(15)可以得到如下两个定性结论:

- (1)中心多面体的 I 值和邻接多面体的 I 值愈小,电声子耦合强度也愈小;
- (2)激活离子的配位数 Z 愈小,电声子耦合强度也愈小。

这些结论将用来分析材料结构与激光性能之间关系的实验事实。

三、荧光转换效率与电声子耦合强度

图2示出了激活离子经过吸收泵光和驰豫过程进入荧光能级以及荧光跃迁 $E_3 \rightarrow E_4$ 的过程。优良激光工作物质的一个重要标准是要有足够高的荧光转换效率。这就要求 $E_2 \rightarrow E_3$ 的驰豫跃迁几率远大于从 E_2 向下的任一辐射的或无辐射的跃迁过程几率,反之,从 E_3 向下的任一辐射过程的几率却要尽量地小。在一般氧化物、氟化物基质中 $E_2 \rightarrow E_3$ 的无辐射跃迁几率都满足上述要求^[6]。而由式(3)可知,无辐射跃迁几率随能隙的加大很快地减小。由于 $E_2 - E_3 \gg E_3 - E_i$,电声子耦合强度 ε 的减小,图3中直线变陡了,虽然会略微减小 $E_2 \rightarrow E_3$ 的无辐射跃迁几率(对氧化物、氟化物基质,假若声子频率 ω_{eff} 足够大, ε 的略微减小并不会影响粒子

从 E_2 往 E_3 的转移效率)。但是它却大幅度地减小了 $E_3 \rightarrow E_1$ 的无辐射跃迁几率,提高了 E_3 上粒子的荧光效率。所以对这类基质,电声子耦合强度愈小荧光转换效率愈高。

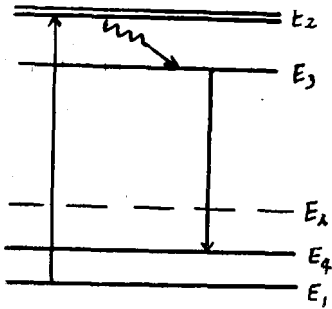


图2 四能级系统示意图

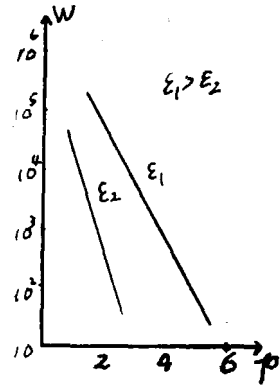


图3 多声子跃迁几率 W 与声子阶数 p 的关系图

四、光谱线宽与电声子耦合强度

吸收光谱带宽和荧光光谱线宽是工作物质激光性能的重要参数。晶体中激活离子光谱线加宽的两个重要机制是:晶格场加宽和电声子耦合加宽。晶格场加宽主要表现为晶格场中能级的分裂以及晶体应力的空间不均匀性产生的谱线不均匀加宽和杂质取代后产生的电荷不平衡引起的谱线加宽。若讨论电荷平衡取代的光学均匀性较好的晶体,光晶格场强度足够大且激活离子所在位置的点群对称性较低时,荧光能级实际上是晶格场分裂后的某一子能级,对荧光能级宽度的重要贡献是电声子耦合机制(激活离子可以处于几种不同位置的情况另当别论)。

Kushida[7]把线宽表示成下式

$$\Gamma_1(T) = \Gamma_1'(0) + \Gamma_1^D(T) + \Gamma_1^R(T) \quad (16)$$

其中 $\Gamma_1'(0)$ 是应力加宽和其它对温度不敏感的加宽, Γ_1^D 是发射或吸收一个声子引起的线宽, $\Gamma_1^R(T)$ 代表双声子拉曼散射的贡献。

$$\Gamma_1^D(T) = \frac{1}{2\pi\rho m v^5} \left\{ \sum_{j>1} |C_{j1}|^2 \omega_{j1}^3 n(\omega_{j1}) + \sum_{j<1} |C_{j1}|^2 \omega_{j1}^3 [n(\omega_{j1}) + 1] \right\}$$

$$\Gamma_1^R(T) = \frac{(a+a')(RT)^7}{2\pi^3 \rho^2 m h^6 v^5 10} \int_0^{\Theta/T} \frac{x^6 dx}{(e^x - 1)^2} = \bar{\alpha}_1 \left(\frac{T}{\Theta} \right)^7 \xi_6 \left(\frac{\Theta}{T} \right) \quad (17)$$

$$a = \left(D_{11} + \sum_{j \neq 1} \frac{|C_{1j}|^2}{E_1 - E_j} \right)^2$$

$$a' = \sum_{j \neq 1} \left| D_{1j} + \sum_{i \neq 1, j} \frac{C_{1i} C_{ij}}{2} \left(\frac{1}{E_1 - E_j} + \frac{1}{E_j - E_i} \right) \right|^2$$

$$\xi_z(Z) = \int_0^Z \frac{x^6 I^x}{(1^x - 1)} dx$$

式17中 ρ_m 是晶体的质量密度, v 是平均声速, θ_D 是晶体的德拜温度, C_{ij} 和 D_{ij} 是单声耦合算符 C 和双声子耦合算符 D 在杂质电子能级 $|i\rangle$ 和 $|j\rangle$ 之间的矩阵元, $n(\omega_{ij}) = \left[\exp(h\omega_{ij}/KT) - 1 \right]^{-1}$ 是能量为 $h\omega_{ij} = E_i - E_j$ ($< K\theta_D$) 的声子占据数。由式(17)可以看出, 要得到窄的荧光谱线宽度, 电声子耦合强度要小, 晶体的德拜温度要高 (从而 ω_{eff} 大) 这与高荧光转换效率的要求是一致的。

晶格场对吸收光谱带宽有较大的贡献, 它将扩大吸收带的光谱范围 (晶格场能级分裂)。另一方面, 晶格场会解除自由离子中可能存在的跃迁禁戒律, 加大吸收强度。因此, 当晶格场对称性低 (晶格场对能级的分裂作用能充分发挥), 晶格场强度大时, 即使电子声子耦合强度弱, 也有可能得到宽而强的吸收谱带。

由实验事实可知^[8], 典型的离子晶体晶场强度减弱电声子耦合强度也随之减弱, 但有较大共价成份的离子晶体却是晶场强度加大伴随着电声子耦合强度减弱。所以选择具有较大共价成份 (I 值小) 的晶体做基质也符合一般激光工作物质对光谱线宽方面的要求。当然, 对于 I 值小的某一个具体的晶体材料, 吸收光谱宽而强和荧光光谱窄又锐的要求不一定都能同时满足。

必须指出, 线宽与晶体结构有比较复杂的关系, 我们这里所得的结论, 一般地讲只能适用于同一种结构类型 (如石榴石型) 晶体的比较。

五、电声子耦合与激活离子的浓度猝灭

声子参予的离子间能量转移是激活离子浓度猝灭的一个重要机制。这种离子能量转移几率 W_{ab} 越大, 浓度猝灭效应越显著。 W_{ab} 可表为^[10]:

$$W_{ab} = \frac{2\pi}{t} |H_{ab}|^2 S_{ab} \quad (18)$$

其中 H_{ab} 是离子间四级相互作用哈密顿, S_{ab} 表示离子 a 的声子发射线形和离子 b 的声子吸收线形之间重叠的函数。从 S_{ab} 数量表达式的具体分析中可以看出: 声子参予的能量转移几率随着电声子耦合强度的减少而很快地减小。因此, 以减弱激活离子浓度猝灭效应这个角度看, 同样要求声子耦合强度要小。

六、結 論

综合上述分析可知, 若选择氧化物、氟化物以及它们的复合化合物作基质晶体, 要符合高效率、低阈值的要求, 应选择阳离子半径对阴离子半径比值小、阴阳离子电负性差值小的晶体, 当然晶体的结合能和堆积密度要足够大。另一方面, 激活离子所处位置点群对称性以低为好, 配位数以小为好。如果基质是氯化物, 由于氯离子电负性值较小而半径又较

大^[11-10]，电声子耦合变得相当小以致矛盾的性质改变，基质阴离子要选择电负性小、半径大的，保证足够大的电声子耦合强度以满足泵浦效率的要求。 $\text{Nd}^{3+}:\text{CeCl}_3$ 这种材料研制成功^[13]正说明了这一点。

关于浓度猝灭效应，目前已确定了一个规律： Nd 离子若由阴离子—阳离子—阴离子键（如 o-p-o 键）隔开，则浓度猝灭效应可以减得很弱。通过上文分析我们可以确立另一个规律： Nd 离子若由 I 值较小的键（或基团）隔开，浓度猝灭效应一般也较弱。某些晶体中，由于 I 值较小，短的激活离子—阴离子—激活离子连接也能使荧光浓度猝灭降至很弱的程度，如 $\text{Nd}^{3+}:\text{CeCl}_3$ 在很高的 Nd 浓度下仍有荧光发射^[13]。

七、几个实验事实的分析

（一）同属石榴石型（ O_h^1 空间群）的钕铝石榴石、钕镓石榴石和钕镱石榴石， Nd^{3+} 位置均属 D_2 点群。它们的荧光寿命均为 ~ 0.2 毫秒， 300°K 下 $4\text{F}_{3/2} \rightarrow 4\text{I}_{11/2}$ 跃迁线宽， $\text{Nd}:\text{YAG}$ 为 65cm^{-1} ； $\text{NdY}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ 约为 65cm^{-1} ； $\text{Nd}:\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ 为 8.0cm^{-1} ，相同实验条件下它们的激光阈值能量依次为1焦耳、250焦耳、350焦耳^[14]。 YAG 中 $I_{\text{Y-O}}=1.86$ ， $I_{\text{Al-O}}=0.86$ ； $\text{Y}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ 中 $I_{\text{Y-O}}=1.86$ ， $I_{\text{Ga-O}}=0.94$ ； $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ 中 $I_{\text{Gd-O}}=1.93$ ， $I_{\text{Ga-O}}=0.94$ 。晶体光谱与激光性能的变化顺序与 I 值由小到大的顺序一致， $\text{Nd}:\text{YAG}$ I 值最小，其激光性能也最好。

另外，Denker等人^[15]研究了掺钕混合型石榴石 $\text{Gd}_3\text{Sc}_2\text{Al}_3\text{O}_{12}$ 和 $\text{Gd}_3(\text{GaSc})_5\text{O}_{12}$ 中 Nd^{3+} 亚稳态的荧光衰减。浓度猝灭条件下的衰减曲线表示成

$$I(t) = I_0 \exp \left\{ - \left[t/\tau_0 + \Pi(t) \right] \right\}$$

其中 τ_0 是辐射寿命， $\Pi(t)$ 是无辐射损耗函数

$$\Pi(t) = \gamma \sqrt{t + \bar{W}t}$$

当掺杂浓度同为5wt%时，两种晶体 γ ， $\bar{W}$ 参数测量值如下

晶 体	$\bar{W}(10^3\text{秒}^{-1})$	$\gamma(\text{秒}^{-1/2})$
$\text{Gd}_3\text{Sc}_2\text{Al}_3\text{O}_{12}$: $\text{Nd}(5\text{wt}\%)$	1	18
$\text{Gd}_3(\text{GaSc})_5\text{O}_{12}$: $\text{Nd}(5\text{wt}\%)$	7.4	45

显然， Nd 在后一种晶体中的无辐射损耗函数大得多，但是Denker等人未能指出这种差别结构本质。我们从 I 值的比较可以看到 $I_{\text{Gd-O}}=0.94 > I_{\text{Al-O}}=0.86$ ，按照本文提出的理论， $\text{Gd}_3(\text{GaSc})_5\text{O}_{12}$ 中 Nd^{3+} 电声子耦合强度较大，所以 $4\text{F}_{3/2}$ 荧光能级上在 Nd^{3+} 离子内的无辐射损耗和 Nd^{3+} 离子间的浓度猝灭无辐射损耗都比较大。

（二） YAG 和 YAP 相比，两者硬度差不多，密度反而是 YAP 大^[14]， Nd^{3+} 点群都属低对称性（ D_2 和 C_{4h} ）。 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAP}$ 荧光线宽几乎为 $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ 的一倍，激光阈值也是前者高。应该注意， YAG 中 Nd^{3+} 的配位数为8，而 YAP 中的相应值为12。根据前述理论， Nd^{3+} 在 YAG 中的电声子耦合强度应较在 YAP 中为小。配位数的差异通过电声子耦合强度的差异影响了激光性能。

(三) $\text{Nd}^{3+} : \text{La}_2\text{O}_2\text{S}$ 的光谱性能比 $\text{Nd}^{3+} : \text{La}_2\text{O}_3$ 有很大的改进^[14], 除了 S^{2-} 离子半径比 O^{2-} 大之外, S^{2-} 的电负性值比 O^{2-} 小 ($I_{\text{Nd}-\text{O}}=2.00$, $I_{\text{Nd}-\text{S}}=0.86$, 而且 $I_{\text{La}-\text{O}} > I_{\text{La}-\text{S}}$)。结构上的这种变化是 $\text{Nd}^{3+} : \text{La}_2\text{O}_2\text{S}$ 受激发射截面加大的重要原因。

(四) 掺稀土的磷酸盐和硅酸盐有好的光谱性能, 掺铋氟磷酸钙、硅酸氧灰石、多磷酸铋等工作物质是近几年来新发展的高效率晶体激光材料。在这里 P^{5+} , Si^{4+} 等离子半径比较小, 而电负性值又比较靠近 O^{2-} 的电负性值。这是这类材料性能特点的结构本质。

(五) 掺铋钼酸钪锂和钼酸镧钠较一般不用碱金属取代的钼酸盐激光阈值低得多, 除了半径小的碱金属离子填充了结构上的空隙, 增大了键合能和晶体的密度之外。同时还由于 $I_{\text{Li}-\text{O}}$ 和 $I_{\text{Na}-\text{O}}$ 较 $I_{\text{Gd}-\text{O}}$ 和 $I_{\text{La}-\text{O}}$ 小, 使电声子耦合强度减小的缘故。

参 考 文 献

- [1] И.С.Андреев, И.Т.Д Физ, Т.Т, 14,10,2967 (1972)
- [2] I.A.Riseberg, H.W.Moos, IEEE, J, Quant, Elect, A, 10, 609 (1968)
- [3] C.Kittel, "Introduction to solid state physics", John, Wiley G Sons, Inc (1971)
- [4] D.J.Newman, Adv, Phys, 20, 197 (1971)
- [5] A.K.Raychaudhuri and D.K.Ray proc.phys Soc.90, 839 (1967)
- [6] R.A.Brondewie and C.L.Telk, J,opt.soc.Amer.57, 1, 1221 (1967)
- [7] T.Kushida, phys Rev, 185, 2, 500 (1969)
- [8] H.W.Moos, J, Lumin.1, 2, 106 (1970)
- [9] 杨频, 第三次全国晶体生长研究工作会议资料 (1974)
- [10] T.Miyakawa and D.L.Dexter, phys.Rev 13 VolI 2961 (1970)
- [11] 徐光宪, 物质结构, 106页, 人民教育出版社 (1961)
- [12] 季寿元, 罗谷风, 结晶学, 370页, 人民教育出版社 (1961)
- [13] L.G.Van Uitert et al, J.Appl, Phys, 46, 1, 436 (1975)
- [14] Handbook of Laser, Editor by R.J.precsley PhD CRC (1971)
- [15] B.I.Denker et al, Sov J.Quant Elect 6 (3) 334 (1976)

提拉法生长 Nd^{3+} :YAG单晶的光学不均匀性问题

山东大学光学系晶体室 张克从

引 言

在激光技术的发展过程中,激光晶体是使用最早,品种最多的一类工作物质,仅就掺有少量过渡金属,稀土金属和钢系金属等元素的晶体已达100余种,到目前仍在发展中。

激光晶体一般地可看作是由基质和少量掺质离子两部分组成。其中组成晶格的主要成分称为基质,作为发光中心的少量掺质离子称为激活离子,激活离子取代基质中某些阳离子的晶格位置,基质的作用,主要为激活离子提供一个长程有序的适宜的晶格场,以便使激活离子发出激光。

自从1964年发出 Nd^{3+} —YAG激光器以来,由于 Nd^{3+} —YAG单晶具有热导率高、硬度大、热膨胀系数小、光弹性好以及 Nd^{3+} 能以四能级系统在室温下脉冲和连续工作等优点,因此直到目前,在激光晶体中仍居于重要地位。

10多年来,在国际上,对 Nd^{3+} —YAG单晶的研制普遍受到重视,所涉及到的研究范围甚广,其中包括相图、单晶生长、单晶缺陷、单晶的物理化学性质,激活离子的光谱特性等方面,积累了大量的资料。可以说现对 Nd^{3+} —YAG单晶的研究已处于相当成熟的阶段。

我国自1968年开始对 Nd^{3+} —YAG单晶生长进行研制,经过伟大的无产阶级文化大革命,作了大量的工作,建立起单晶生长与检测分析的物质基础,形成了一支以工人为主体的专业队伍,进行了单晶生长工艺、检测和单晶缺陷等方面的研究,生长出质量较高的单晶,大部分可满足国家的需要,现处在批量生产的初步阶段。但在过去的几年中,由于受“四人帮”的干扰破坏,对进一步提高单晶质量,尚存在一些问题,当前应在英明领袖华主席为首的党中央的领导下,自力更生,奋发图强,立足于赶超世界先进水平,为人类作出较大的贡献。

Nd^{3+} —YAG激光器的功能,在很大程度上取决于单晶的光学质量。因此提高激光器的功能,首先在于提高单晶的光学质量。理想的要求是基质的完整性和掺质在晶格中分布的均匀性,以避免发光中心间的相互干扰作用。但在单晶生长中如何控制其光学质量以达到这一理想的程度,这一重要的研究课题,无论是在工艺技术方面或理论上均有待进一步的探讨。

本文主要根据当前国内用提拉法(石墨—钼坩埚单晶生长体系)生长的 Nd^{3+} —YAG单晶的光学不均匀性问题,着重地从晶体生长的理论基础出发,简要地阐述两个问题:

(一) 掺杂 Nd^{3+} 离子问题

(二) 散射颗粒的问题

并寻求提高单晶的光学质量的途径。在这里所说的光学不均匀性指的是晶体的整体不均匀性与局部不均匀性。晶体的整体不均匀主要是由于掺杂质 Nd^{3+} 的分凝效应所引起的,此类不均匀性在一般情况下是难于控制的。晶体的局部不均匀性主要是由于生长缺陷所引起的,此类不均匀性,只要妥善的改变工艺条件与工艺卫生,多是可以消除的。

由于作者缺乏实践经验,理论水平有限,加之时间紧迫,文中不妥之处,请同志们批评指正。

(一) 掺质 Nd^{3+} 离子问题

关于 Nd^{3+} —YAG单晶的主要掺质 Nd^{3+} ,存在着两个方面的问题,一是掺质在单晶分布的均匀化问题,二是在保证单晶质量的前提下适当提高掺质含量的问题。

现简要地分别加以阐述。

(1) 掺质 Nd^{3+} 离子在单晶中分布的均匀化问题

掺质 Nd^{3+} 在晶体中的含量与分布是受其分凝效应制约的。下面着重讨论一下掺质在晶体中产生不均匀性的原因及其分布的规律性,随后指出掺质均匀化的可能有效的途径。

1.1 溶质分凝的理论基础

用提拉法生长 Nd^{3+} —YAG单晶是一种正常凝固过程。晶体在整个生长过程中,晶体—熔体体系中的溶质总量可认为是不变的,所以生长出的晶体是一种置换固溶体。YAG为溶剂, Nd^{3+} 为溶质,溶质沿单晶轴向的分布与溶质分凝效应有关。所谓分凝效应,就是溶质在固液两相中的浓度不同,此可作为二元互溶体系中固液两相平衡特性所产生的结果。特别是当溶质在溶液中的浓度很小时,应用二元互溶体系的相图来定量地阐明分凝效应是简单明了的。如图1所示:

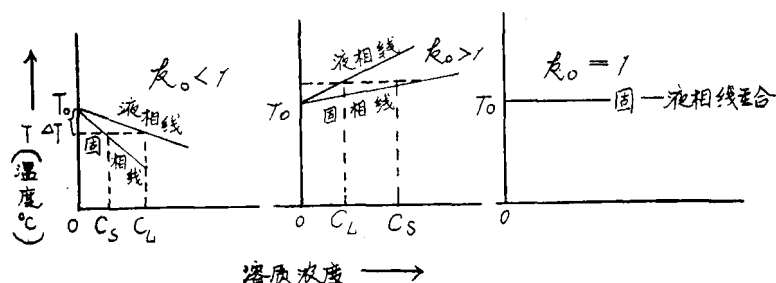


图1 二元互溶体系部分相图

当溶质浓度很小时,相图的液相线与固相线可认为是条直线,即固相线和液相线的斜率均为常数。这样以来,可定义 k_0 为溶质的平衡分凝系数。即

$$k_0 = \frac{C_S}{C_L} = \frac{(\text{斜率})_L \Delta T}{(\text{斜率})_S \Delta T} = \frac{(\text{斜率})_L}{(\text{斜率})_S}$$

常数 k_0 与体系的温度,溶液的浓度无关,只取决于溶剂与溶质的性质。

由图1可见:

对于降低溶液熔点的溶质, $k_0 < 1$ 。而对于提高溶液熔点的溶质, $k_0 > 1$ 。当在相变时溶质不作重新分布, $k_0 = 1$ 。

掺质 Nd^{3+} 在YAG单晶的平衡分凝系数 $k_{10} = 0.21$,显然地单从相平衡的角度来看,晶体中 Nd^{3+} 浓度 $C_S = 0.21 C_L$,这意味着晶体生长时在固液相界面处熔体中 Nd^{3+} 浓度约为生长着的晶体中的5倍。当单位体积的熔体结晶时,必须将其中79%的 Nd^{3+} 排除出去,因此随着单晶的生长,剩料熔体中的 Nd^{3+} 浓度 C_L 将逐渐增加,虽然可认为 $C_S = k_0 C_L$ 的关系在整个晶

体生长过程中均成立,而且 k_0 值始终保持为一常数,但由于熔体中掺质浓度 C_L 逐渐增大,故晶体中的 Nd^{3+} 浓度相应地也是逐渐增加的。这就是晶体中轴向掺质浓度分布在整体中不均匀物理原因。

根据正常凝固方程计算单晶中溶质沿轴向分凝浓度的分布的规律,可用下式表示:

$$C_{S(x)} = k_0 C_0 (1-x)^{k_0-1} \quad (1)$$

这里, C_0 : 初始熔体中溶质的浓度

k_0 : 溶质的平衡分凝系数

x : 已凝固的晶体占熔体总量的百分数

如果单晶是等径生长,这时 x 正比于晶体的长度,即

$$x = \frac{l}{l_0}$$

这里, l_0 : 熔体折合的总长度

l : 已凝固的晶体的长度

从(1)式可知,只要熔体中存有溶质,即 $C_0 \neq 0$,而且 $k_0 \neq 1$ 时,在正常的工艺条件下所生长出的晶体,在沿轴向的溶质浓度分布总是不均匀的。而溶质浓度在径向中的分布是否均匀,这取决于固液介面的形状,只有当相介面平坦时,溶质在径向才能作均匀的分布。

假定单晶的等效长度为10厘米,将 $k_0 = 0.21$ 代入(1)式中进行计算,就可大体上描述出 Nd^{3+} 在晶体中的分布曲线,可作工作中的参考。

在此应该注意,利用(1)式计算溶质在晶体中的分布浓度只是近似值,它同单晶生长的动态过程的溶质分凝浓度是有差别的。在相介面附近的熔体中,根据溶质原子运动所遵循的连续方程和相应的边介条件,可得出有效分凝系数 $k_{\text{有效}}$ 的表达式:

$$k_{\text{有效}} = \frac{C_S}{C_L} = \frac{k_0}{k_0 + (1-k_0) \exp(-f \cdot \delta / D)} \quad (2)$$

式中, k_0 : 溶质的平衡分凝系数

f : 晶体的生长速度(可近似看作提拉速度)

δ : 相介面处扩散层厚度

D : 溶质的扩散系数

而溶质的扩散层厚度 δ 与晶体转速 ω 存在的关系:

$$\delta = 1.61 D^{1/3} \gamma^{1/6} \omega^{-1/2} \quad (3)$$

式中, γ : 熔体的动黏滞系数

对于一给定的熔体体系,溶质的平衡系数 k_0 可视为常数。由(2)式可以看出, $k_{\text{有效}}$ 与晶体生长速率 f 、溶质的扩散系数 D 、扩散层厚度 δ 有关。根据(3)式得知扩散层厚度 δ 与熔体的动黏滞系数 γ 、晶体转速 ω 、扩散系数 D 有关。综合(2)(3)两式参数间的关系,在某一时刻生长的单晶中所含有的溶质浓度 $C_{S(x)}$ 可由

$$C_{S(x)} = k_{\text{有效}} \cdot C_L \quad (4)$$

来决定。这样一来,结晶物质的物性参数($k_0 D$ 、 γ)与晶体生长的工艺参数(f 、 ω)、熔体中的溶质浓度 C_L 都会时刻对生长着的晶体中溶质浓度产生影响,因此欲使掺质浓度在晶体中整体分布均匀,看来是一件较困难的事情。

1.2 组分过冷所引起的溶质偏聚

由于溶质 Nd^{3+} 的 $k_0 < 1$ ，熔体的凝固点将随熔体中溶质的浓度的增加而降低。熔体由于溶质的局部富集而产生一过冷区，这一因溶液组分变化而产生过冷区的现象，称为组分过冷。在组分过冷区内，晶体生长的相界面将变为不稳定的，光滑的相界面将变成凸凹不平，这时的晶体生长将是凸凹不平的相面向熔体中逐渐延伸，而掺质向凸起部位间的凹沟内富集，这样由于溶质偏聚的结果，相界面被溶质偏聚的富集区域分成许多胞状组织。但如果这些溶质偏聚十分严重，当长入晶体后，就会形成 Nd^{3+} 弥散颗粒，这种颗粒对光起着散射作用，必然严重地影响晶体的完整性与光学质量。

如欲避免由于溶质偏聚而引起的脱溶沉淀相的形成，首先在于消除组分过冷。如果我们假定在扩散层内扩散是溶质运输的唯一机制，意即不考虑熔体内的动态效应，根据熔体中温度分布线与熔体凝固总曲线在相界面处相切的条件，如图2所示：

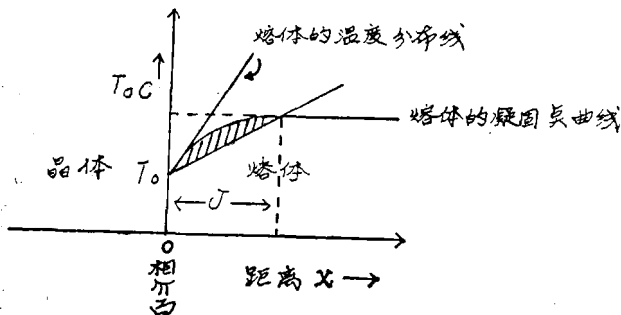


图2 建立临界组分过冷的条件

可求出不产生组分过冷的临界条件为：

$$G/f \geq \frac{mC_L(1-k_0)}{Dk_0} \quad (5)$$

式中，G：相界面前沿熔体中的温度梯度

f：晶体的生长速率

C_L ：熔体中溶质的平均浓度

m：液相线的斜率

D：溶质的扩散系数

k_0 ：溶质的平衡分凝系数

在(5)式中左边的G与f是可调节的生长工艺参数。而(5)式中等号右边的m、 k_0 、 C_L 、D是熔体体系的物性参数。对于已确定的熔体体系，这些物性参数是无法调节的，因此可作常数来看。这样只要当相界面前沿的熔体中的G与f之比值大于或等于此常数量时，就可避免组分过冷。对于已确定的熔体体系来说，G愈大，f愈小，就愈不易出现组分过冷，这样，在晶体生长时也就不会发生溶质偏聚。对于不同的熔体体系，熔体中溶质的平均浓度 C_L 愈小，液相线斜率m愈小，平衡分凝系数 k_0 愈近于1，则熔体愈不易出现组分过冷，在极限的情况下，若 $C_L \rightarrow 0$ ，或 $k_0 \rightarrow 1$ ，即 $\frac{mC_L(1-k_0)}{Dk_0} \rightarrow 0$ 的条件下，则不管G/f的比值大小

如何，都不会出现组分过冷的。如果考虑熔体的自然对流和晶体转动所产生的强迫对流效应，对于不会出现组分过冷的临界条件为：

$$G/f \geq \frac{mC_L(1-k_0)}{D[k_0 + (1-k_0)\exp(-f\delta/D)]} \quad (6)$$

当(6)式等号右边的数值愈小，熔体愈易避免组分过冷。

在生长 Nd^{3+} -YAG单晶时，由于掺质 Nd^{3+} 的平衡分凝系数 $k_0 = 0.20$ 左右，从(6)式可以看出，熔体容易出现组分过冷。因而在生长单晶时，晶组的转速较快，通常转速在100转/分左右，其目的之一就是使扩散层 δ 变薄，以便避免熔体的组分过冷。

1.3促成晶体中溶质浓度分布均匀化的可能有效的途径

用提拉法生长单晶, 如何使掺质在晶体中均匀的分布, 这是大家较为关心的一个重要的实践问题, 国外有些人为了解决这一问题, 对生长设备作了不少的设计, 例如: 溶液稀释法, 熔体补充法, 浮动坩埚法, 层熔法等, 但由于所设计的设备繁杂, 国内均未采用这些方法。

由于掺质 Nd^{3+} 的平衡分凝系数 k_0 较小, 因此在单晶生长过程中, 致使熔体中含Nd量愈来愈多, 但在任何时刻, 生长的晶体中的掺质浓度均符合(4)式的关系。在确定的单晶生长体系中, 熔体中的掺质浓度难于控制, 但 $k_{\text{有效}}$ (见(2)式)可通过生长工艺参数(f, ω)加以调节, 如能作到使 $k_{\text{有效}} \cdot C_L(x)$ 的乘积始终保持为常数, 这样也就能使晶体中掺质浓度 $C_s(x)$ 均匀化了。

上海中国科学院光机所用提拉法生长 Nd^{3+} -YAG单晶时, 随着单晶的生长, 坩埚中液面位置的下降, 熔体中 Nd^{3+} 浓度的逐渐升高, 晶体的增长, 而相应地按计划改变拉速、转速和加热功率。改变拉速以适应熔体中掺杂浓度的变化, 改变晶转以适应相介面形状的变化, 改变加热功率以适应晶体作等径生长。经多次地实验成功地生长出光学性均匀的优质晶体。

(2) 适当地提高掺质 Nd^{3+} 浓度的问题

Nd^{3+} -YAG单晶生长中一个重要问题, 就是掺入YAG晶体中的 Nd^{3+} 浓度较低, 特别用提拉法生长晶体更是如此。采用极缓慢的生长速率, 在不损害晶体光学均匀性的前提下, 使掺质进入基质的困难有些减小, 但并未消除, 其根本原因在于晶体结构上的困难。这是YAG晶体作为激光基质晶体的不足之处。

2.1 YAG晶体结构

YAG晶体结构属于立方晶系, 空间群为 $O_h^{10}-I_{a3d}$, 晶格常数为 $12.0 \pm 0.02 \text{ \AA}$, 单胞内含有8个 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 分子, 其中共有24个 Y^{3+} 离子, 40个 Al^{3+} 离子, 96个 O^{2-} 离子。 O^{2-} 离子处在一般等效点系的位置, 阳离子处在特殊等效点系的位置, 并分为3组, 其中16个 Al^{3+} 离子各处在由6个 O^{2-} 离子所堆积成的八面体的空隙中, 称八面体a格位。另外24个 Al^{3+} 离子各处在由4个 O^{2-} 离子所堆积成的四面体的空隙中, 称四面体d格位, O^{2-} 离子四面体和八面体相互联系起来, 构成较大的空隙, 此可看作由8个 O^{2-} 离子所堆积成的畸变的十二面体, 所有的24个 Y^{3+} 离子各处在此种十二面体的中心位置, 称十二面体C格位。这三种配位多面体在晶体结构中相对排列的位置如图3所示:

YAG晶体的晶格类型属于立方体心格子, 八面体a格位 Al^{3+} 形成立方体心结构, 而四面体d格位 Al^{3+} 和十二面体C格位 Y^{3+} 均处在立方体面的等分线上。

YAG晶体的 $\frac{1}{8}$ 个单胞的结构模型如图4所示:

空间群 $O_h^{10}-I_{a3d}$ 有8种不同类型的等效点系的对称配位, 阴离子占据一般等效点系位置, 阳离子占据三种特殊等效点系位置。因此尚有一些特殊点系位置空着, 这些空着的等效点系以及其它空隙位置, 能够为离子半径较小的杂质离子所占据。这些杂质离子有可能形成色心, 而色心对光起着吸收作用。

2.2 掺质 Nd^{3+} 浓度问题

通过对YAG单晶中 Nd^{3+} 浓度, 荧光强度和荧光寿命间相互关系的研究表明, 一般认为

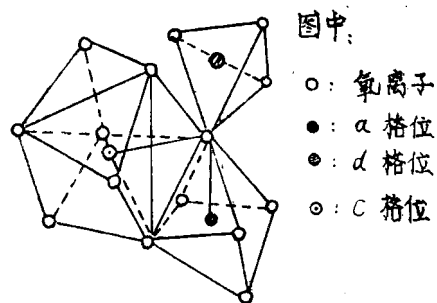


图3 YAG晶体结构中三种配位多面体的相对排列位置

晶体中含 Nd^{3+} 量约1%（重量比）左右为宜。由于 Nd^{3+} 离子的平衡分凝系数 k_0 约为0.20左

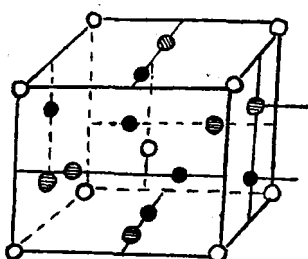


图4 YAG 晶体单胞的 $1/8$ 结构模型

图中：
 $\circ$ ：八面体 a 格位（16）
 $\odot$ ：十二面体 C 格位（24）
 $\otimes$ ：四面体 d 格位（24）
 O^{2-} ：氧离子的配位多面体没有画

右，这样熔体中 Nd^{3+} 含量需要5%（重量比）左右，能容易地加入的最大量是 Nd_2O_3 的重量约占原料总重量的24%左右。在这个含量的范围内，晶体中掺入的钕含量越高，晶体的激光效率也就越高。

掺入的 Nd 进入晶体结构中的十二面体 C 格位，以取代 Y^{3+} 离子。从离子半径大小来看， Nd^{3+} 的离子半径为 $1.323 \text{ \AA}$ ，而 Y^{3+} 的离子半径为 $1.281 \text{ \AA}$ ，这样 Nd^{3+} 的离子半径要比 Y^{3+} 的离子半径约大12%，因此 Nd^{3+} 掺入YAG晶体中有其结构上的困难，这也是 Nd^{3+} 的平衡分凝系数 k_0 较小的内在原因。 Nd^{3+} 在晶体中浓度的大小将直接影响到晶体的光学均匀性，也就是说提高掺入晶体中的 Nd^{3+} 浓度与晶体光学均匀性之间出现了矛盾，为了解决这一矛盾，国外曾有人致力于制备 $\text{Nd}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 晶体，但由于 Al_2O_3 — Nd_2O_3 属二元体系只能形成钙钛矿（ CaTiO_3 ）结构型的 NdAlO_3 ，而不可能形成具有石榴石结构型的 $\text{Nd}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 化合物，因此无论采用什么方法均未实验成功。

为了解决提高 Nd^{3+} 在晶体中浓度与晶体的光学均匀性间出现的矛盾，掺入比 Y^{3+} 离子半径较小的三价稀土离子，使晶体成混晶的形式 Nd^{3+} — YAG — $\text{L}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ ，式中 $L = \text{Er}^{3+}$ 、 Ho^{3+} 、 F_a 、 Y_b 、 L_n 等三价稀土离子，意图使得 $\frac{1}{2}(\text{R}_{\text{Nd}^{3+}} + \text{R}_L^{3+}) = \text{R}_{\text{Y}^{3+}}$ （ R 为离子半径）来进行体积补偿，以提高 Nd^{3+} 在晶体中的固溶度。实验证明最有成效地是掺入 Lu^{3+} 离子（离子半径为 $0.85 \text{ \AA}$ ）掺入的 Lu^{3+} 离子大部分进入十二面体 C 格位，少部分进入八面体 a 格位，并且所掺入的 Lu^{3+} 离子含量接近于 Nd^{3+} 离子浓度时为最佳条件。这样可提高 Nd^{3+} 掺入晶体的浓度，并减小基质对紫外吸收，提高了晶体的激光输出效率，这是很可取之处。但缺点是 Lu^{3+} 离子的平衡分凝系数为 1.38 — 1.4 ，因此 Lu^{3+} 浓度在晶体中沿轴向的分布是不均匀的，从而对晶体的光学均匀性是不利的因素。

利用双掺或多掺的方法，虽然可以增加含 Nd 量，但由于助掺离子进入晶格，有可能形成杂质团，这些杂质团改变了 Nd^{3+} 在晶格中的相对位置，从而影响到 Nd^{3+} 在晶格场中的光谱特性，引起光谱的不均匀分裂与谱线加宽等。因此在考虑双掺或多掺时，不仅要保证晶体的光学均匀性，而且还要注意到晶体的激光光谱特性。有关双掺或多掺的问题，国内过去在这方面的研究工作作的较少，有待今后进一步探讨。