

Nd:YAG、Cr:Nd:YAG 及 Ce:Nd:YAG 在太阳光泵浦下的光谱匹配研究

张佳, 赵长明*, 蔡子韬, 赵梓寅

北京理工大学光电学院, 北京 100081

摘要 以 Nd:YAG、Cr:Nd:YAG 和 Ce:Nd:YAG 三种激光材料为研究对象, 采取以空间应用和地面应用为导向的两种太阳光谱模型, 计算了太阳辐射光谱与材料吸收光谱之间的重叠效率。将激光材料的吸收系数引入重叠效率, 分析了经吸收系数修正后, 激光材料的太阳光谱匹配效率随吸收长度的变化关系。当接近光谱匹配效率极限值时, 地面太阳光谱模型下 Nd:YAG、Cr:Nd:YAG 和 Ce:Nd:YAG 所需要的吸收长度分别为 6.5 cm、4.4 cm 和 3.7 cm, 空间太阳光谱模型下所需要的吸收长度分别为 7.3 cm、4.3 cm 和 3.8 cm, 所研究的吸收长度为激光材料的长度参数设计提供了可供参考的最大值。同时 Ce:Nd:YAG 晶体计算出的长度最短, 预计泵浦光在该材料中传输时引入的散射损耗将最小, 因此以 Ce:Nd:YAG 晶体作为激光材料, 有望进一步提高和改善太阳光泵浦激光器的输出性能。

关键词 激光器; 固体激光器; 激光材料; 太阳光泵浦; 光谱匹配

中图分类号 TN244

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL221500

1 引言

太阳能以其资源丰富、使用清洁和储量巨大的特点, 被公认为未来的主要能源之一。在激光器诞生之初, 太阳光泵浦激光器的概念就引起了研究学者的兴趣。太阳光泵浦激光器以太阳光作为激光泵浦源, 是一种直接将太阳光转换为激光的装置, 具有系统结构可靠、能量转换环节少、实现高效太阳光到激光能量传输的优点。自 Young 等^[1]在 1966 年首次以太阳光泵浦激光材料 Nd:YAG, 获得 1 W 的激光输出以来, 历经 50 多年, 研究者通过改善太阳光会聚系统、设计有效泵浦腔以及寻找合适的激光材料, 使得太阳光泵浦激光器的输出性能得到逐步提升^[2-4]。Dinh 等^[5]以 4 m² 面积的非涅耳透镜作为初级会聚系统, 端侧混合抽运 Nd:YAG 晶体, 获得了 120 W 的激光输出, 单位面积的太阳光收集效率为 30 W/m², 太阳光-激光转换效率为 3.26%; 关哲(Guan)等^[6]将螺纹和键合工艺引入到 Nd:YAG 晶体棒上, 以 1.03 m² 面积的非涅耳透镜抽运 Nd:YAG 晶体, 获得了 32.1 W/m² 的收集效率, 达到目前为止利用 Nd:YAG 所获得的最高太阳光收集效率。Liang 等^[7]以定日镜-抛物面镜作为初级太阳光会聚系统, 端侧混合泵浦 Cr:Nd:YAG 陶瓷, 将收集效率提升至 32.5 W/m², 太阳光-激光转换效率为 3.7%, 同时该团队率先开展了

太阳光泵浦 Ce:Nd:YAG 晶体实验^[8], 在 2022 年以小尺寸的定日镜-抛物面镜收集太阳光, 获得了 38.2 W/m² 的收集效率^[9], 同年实现了在一个泵浦腔中同时泵浦三根 Ce:Nd:YAG 晶体, 将总的收集效率提升至 41.25 W/m²^[10]。

太阳光是连续宽光谱光源, 辐射光谱范围涵盖 0.15~4 μm 波段。尽管宽带的太阳光谱包含许多激光材料吸收带, 但不同材料吸收带的带宽有限, 且不同种类掺杂离子和不同离子浓度的材料对太阳光的吸收能力不同, 导致激光器系统对太阳光的利用率不高, 从根本上限制了太阳光到激光的转换效率。未被激光材料吸收的太阳辐射, 最终以热的形式存在于系统中, 为固体激光器的散热系统增加负担, 这一问题也被称为“光谱匹配问题”^[11]。为提高太阳光泵浦激光器的转换效率, 研究合适的激光材料是一项重要的工作。赵彬等^[12]通过建立太阳光谱模型, 结合 Nd:YAG 等几种激光材料的吸收波段, 分析计算了激光材料吸收带吸收的能量占太阳常量的百分比, 其中 Nd:YAG 材料的重叠系数 0.16 被该领域普遍采用; 张军斌等^[13]从四能级系统速率方程出发, 着重从泵浦阈值的角度, 考虑太阳辐射带状光谱特性, 分析比较了太阳光泵浦激光材料在单束光侧面泵浦和椭球腔侧面泵浦下的泵浦阈值光强, 为太阳光泵浦物质的选择提供了详实的理论建模依据。此外, 研究学者多从激光材料的激发和发射光

收稿日期: 2022-12-06; 修回日期: 2023-01-02; 录用日期: 2023-02-06; 网络首发日期: 2023-03-09

基金项目: 国家自然科学基金(61378020, 61775018)

通信作者: *zhaochangming@bit.edu.cn

谱以及多掺杂离子之间能量转换效率的角度分析其对太阳光的吸收能力^[14-17]。

本课题组在太阳光泵浦激光材料的选择中已做了初步的研究分析^[12],但研究中缺少对激光材料吸收特性的考量,同时采用的太阳光谱数据为大气层外的空间太阳光谱,与适于地面应用的太阳光谱有一定的差异。此外,随着太阳光泵浦激光器领域的发展,近年来具有更优秀泵浦性能的激光材料被陆续发掘出来。鉴于此,在文献[12]工作的基础上,本文以当前广泛使用的Nd:YAG、Cr: Nd: YAG以及新发掘的Ce: Nd: YAG激光材料为研究对象,通过分析能级结构确定其吸收波段,并将材料在不同波段的吸收系数考虑进来,以太阳光泵浦激光器的理论为基础,建立激光材料与太阳光谱的匹配效率随吸收长度变化的模型。在光谱匹配方面,采用美国材料与试验协会(ASTM)最新公布的以空间应用为导向的大气层外太阳光谱辐照度AM0^[18]和以地面应用为导向的地球太阳光谱辐照度AM1.5^[19]这两种太阳光谱标准,建立更精细化的太阳光谱与激光材料的光谱匹配模型。通过三种材料在两种太阳光谱模型下的匹配分析,探讨其在太阳光泵浦激光器中的应用潜力。

2 太阳光泵浦激光器激光材料的光学特性研究

2.1 Nd:YAG 光学特性

激光器的激光材料由基质和激活剂/敏化剂离子构成。固体基质包括晶体、玻璃、陶瓷等,它们只有具有良好的光学、机械和热特性,才能实际承受激光器恶劣的工作环境^[20]。在太阳光泵浦激光器发展开始阶段,研究人员就在寻找合适的基质材料和掺杂离子,基质材料包括红宝石、钇铝石榴石(YAG)、钆钪铝石榴石(GSGG)以及正钒酸钇(YVO₄)等,其中YAG基质以其硬度高、光学质量好、热导率高等优良特性受到重视。激活剂以Nd³⁺为主,因为Nd³⁺具有四能级结构,使激光器能够在高增益和低阈值下工作,且Nd³⁺在可见光波段具有丰富的吸收带。因此,Nd:YAG成为目前最常用的太阳光泵浦激光材料。

表1列出了Nd:YAG的一些重要光谱特性,其主要泵浦带为0.81 μm和0.75 μm,在室温下以最强的⁴F_{3/2}→⁴I_{11/2}跃迁产生1.064 μm激光波长的振荡。在太阳光泵浦激光器中主要利用的是Nd:YAG的晶体形态,其散射损耗系数小,具有较高的量子效率。但在Nd:YAG激光材料中,由于Nd³⁺的⁴F_{3/2}电子态有部分禁止的电偶极子跃迁,使得其吸收光谱线较窄,与太阳辐射光谱的重叠度较低,因此限制了太阳光泵浦Nd:YAG激光器的转换效率。

2.2 Cr: Nd: YAG 光学特性

为进一步提高Nd:YAG激光器的效率,具有交

表1 Nd:YAG部分光学特性和物理性质

Table 1 Optical and physical properties of Nd:YAG

Property	Value
Melting point /°C	1970
Thermal conductivity at 300 K / (W·cm ⁻¹ ·K ⁻¹)	0.14
Stimulated emission cross-section of ⁴ F _{3/2} → ⁴ I _{11/2} transition σ ₂₁ / cm ²	2.8×10 ⁻¹⁹
Fluorescence lifetime / μs	230
Scattering loss α _{sc} / cm ⁻¹	0.002

叉弛豫振荡现象的掺杂Cr³⁺和Nd³⁺的Cr: Nd: YAG激光材料获得了研究者的广泛关注。图1(a)为Cr: Nd: YAG的能级结构图^[21],Cr³⁺的吸收峰为440 nm(⁴A₂→⁴T₁)和600 nm(⁴A₂→⁴T₂),同时Cr³⁺对Nd³⁺有敏化作用,Cr³⁺经低能级⁴A₂被泵浦到高能级⁴T₁和⁴T₂

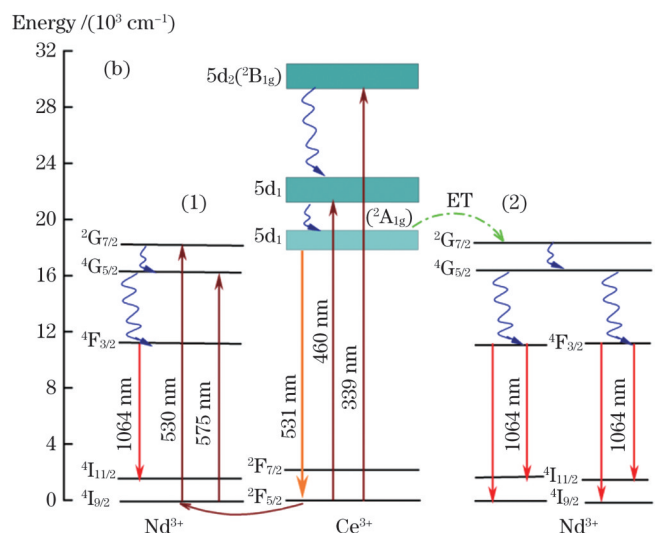
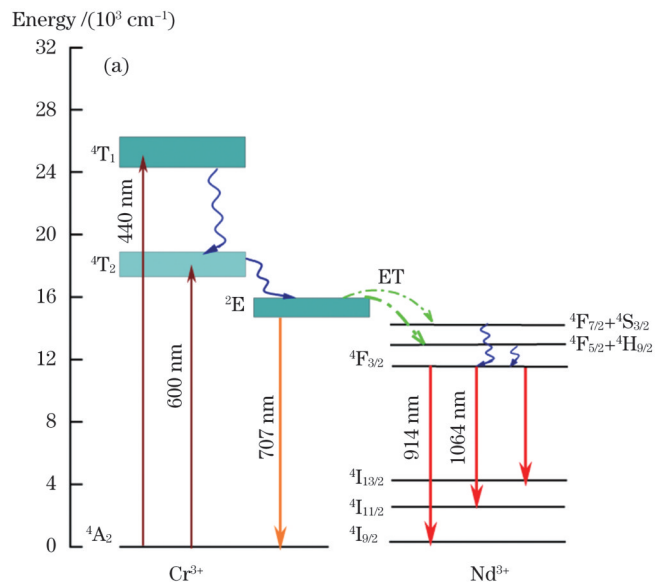


图1 Cr: Nd: YAG和Ce: Nd: YAG的能级结构图。

(a)Cr: Nd: YAG; (b)Ce: Nd: YAG

Fig. 1 Energy level structure. (a) Cr: Nd: YAG;

(b) Ce: Nd: YAG

后,无辐射跃迁至 3E 能级,小部分 3E 能级上的电子跃迁返回至基态 4A_2 并伴随 650~850 nm 的荧光,多数 3E 能级上的电子通过能量转移(ET)的方式激发高能级的 Nd^{3+} 。这种 Cr^{3+} 向 Nd^{3+} 的能量转移过程,增强了 Nd^{3+} 发光的荧光强度,有利于改善和提高太阳光泵浦激光器的输出功率。相较于单晶材料,透明陶瓷作为新一代固体激光材料,可以实现更高掺杂浓度、更大尺寸的制备^[22]。在太阳光泵浦激光器中,Cr:Nd:YAG 是目前正在采用的陶瓷激光材料,实验上也取得了不少研究成果,然而受陶瓷制备工艺的影响,尽管 Cr:Nd:YAG 材料的吸收光谱与太阳光谱的重叠率高,但其相较于 Nd:YAG 晶体的散射损耗系数更大,导致太阳光泵浦 Cr:Nd:YAG 陶瓷的实验结果达不到理论的预期效果,没有展现出优于 Nd:YAG 晶体的性能。

2.3 Ce:Nd:YAG 光学特性

近几年 Ce^{3+} 也被太阳光泵浦激光器领域的科研人员发掘。 Ce^{3+} 和 Nd^{3+} 之间的能量转换包含辐射能量转移和非辐射能量转移两个过程^[17,23-24]。图 1(b) 为 Ce:Nd:YAG 的能级结构图。 Ce^{3+} 的主要吸收带为 460 nm ($^2F_{5/2} \rightarrow ^5d_1$) 和 339 nm ($^2F_{5/2} \rightarrow ^5d_2$), 其中 5d_1 能级在能量转移中起主要作用。处于 5d_1 能级上的 Ce^{3+} 分两个路径实现对 Nd^{3+} 的能量转换: 路径 1 为辐射能量跃迁, 5d_1 能级上 Ce^{3+} 跃迁回至基态 $^2F_{5/2}$, 并发出 531 nm 附近的荧光, 而 Ce^{3+} 该波段的荧光又恰好与 $Nd^{3+}: ^4I_{9/2} \rightarrow ^2G_{7/2}$ 的吸收带重叠, 通过交叉弛豫的过程激发 Nd^{3+} , 进而增强了 Nd^{3+} 在 1064 nm 的荧光强度, 该过程也叫辐射再吸收过程, 如图 1(b) 中(1)所示; 路径 2 为非辐射能量转移, 部分 Ce^{3+} 将能量转移给 $^2G_{7/2}$ 能级上的 Nd^{3+} , 受到激发的 Nd^{3+} 先下移至 $^4F_{3/2}$ 能级, 最后发出 1064 nm 激光, 该过程也被文献^[23]称为协同下转换过程, 因为 $Ce^{3+}: ^5d_1 \rightarrow ^2F_{5/2}$ 的能级差是 $Nd^{3+}: ^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$ 能级差的两倍, 由此可能导致 Ce^{3+} 向 Nd^{3+} 的协同下转换, 如图 1(b) 中(2)所示。 Ce^{3+} f-d 能级的允许跃迁带, 补充了 Nd^{3+} f-f 的部分禁带跃迁, 且 Ce^{3+} 在 460 nm 有一个强吸收峰, 与太阳光在 350~550 nm 波段的强辐射带重叠, 可有效吸收该波段的太阳光能量。目前太阳光泵浦 Ce:Nd:YAG 晶体的研究虽在起步阶段, 但初期实验成果已让研究人员看到了进一步提高太阳光泵浦激光器输出性能的潜力。

3 太阳光泵浦激光材料光谱匹配效率的理论研究

激光输出功率可表示为^[20]

$$P_{out} = \left(\frac{1-R}{1+R} \right) \left(\frac{2\eta_p \eta_T \eta_A \eta_Q \eta_S \eta_B}{2\alpha l - \ln R} P_{in} - AI_s \right), \quad (1)$$

式中: R 为耦合输出镜的反射率; α 为激光材料的散

射损耗系数; l 为激光材料长度; $2\alpha l$ 代表激光在谐振腔内往返的散射损耗; η_p 代表太阳辐射光谱与激光材料吸收光谱之间的重叠效率; η_T 为传输效率, 表示从泵浦腔传输到激光材料上的泵浦辐射量; η_A 为材料吸收的有效泵浦辐射; η_Q 、 η_S 、 η_B 分别为量子效率、斯托克斯因子以及光束交叠效率; P_{in} 为输入功率; A 为激光材料的横截面积; I_s 为饱和光强。整个公式完整表示了从输入泵浦源到转换为激光输出的过程。

对于宽带的太阳光谱, 重叠效率 η_p 可表示为

$$\eta_p = \frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} P_\lambda d\lambda}{\int_0^{+\infty} P_\lambda d\lambda}, \quad (2)$$

式中: P_λ 为太阳光单位波长的辐射功率。式(2)右端分母表示光谱范围内总太阳辐照度, 分子表示对太阳光谱在激光材料有效泵浦带 $\lambda_1 \sim \lambda_2$ 的辐照度积分。

激光材料的吸收系数反映了单位长度的吸光材料对特定波长的吸收程度, 单位为 cm^{-1} 。当泵浦光在激光材料内实际通过的光路长度为 L 时, 吸收效率表示为

$$\eta_A = 1 - \exp(-\sigma L), \quad (3)$$

式中: σ 为材料的吸收系数。

综合考虑重叠效率和吸收效率, 引入光谱匹配因子 η_R :

$$\eta_R = \eta_p \eta_A = \frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} P_\lambda d\lambda}{\int_0^{+\infty} P_\lambda d\lambda} [1 - \exp(-\sigma L)]. \quad (4)$$

由于材料的吸收系数与波长相关, 故

$$\eta_R = \eta_p \eta_A = \frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} [1 - \exp(-\sigma L)] P_\lambda d\lambda}{\int_0^{+\infty} P_\lambda d\lambda}. \quad (5)$$

η_R 定义为经吸收系数修正后, 激光材料与太阳光谱的匹配效率。该值不仅考虑了材料吸收带所吸收的能量占整个太阳光谱带的百分比, 而且引入了吸收系数以及光在激光材料内经过的光程长度对泵浦吸收量的影响。基于 η_R 公式的推导, 本文建立了激光材料与太阳光谱的匹配模型, 并探讨了当下太阳光泵浦激光器常用的 Nd:YAG、Cr:Nd:YAG 以及 Ce:Nd:YAG 三种激光材料的吸收光谱与太阳光谱的匹配情况, 为进一步改善和提高太阳光泵浦激光器的输出性能做理论分析。

4 太阳光谱匹配效率计算

4.1 太阳光谱模型的建立

采用 ASTM 给出的以空间应用为导向的大气层

外太阳光谱辐照度标准 AM0^[18]和以地面应用为导向的地球太阳辐照度标准 AM1.5^[19]建立太阳光谱数据库。其中 AM1.5 提供了两种地面接收条件下的太阳光谱辐照度标准:法向直接日射和半球向日射辐照度,测量波段为 0.28~4 μm;AM0 的测量波段范围为 0.1195~1000 μm,但自 2.5 μm 后波长间隔大,采样点稀疏。根据 ASTM 所提供的辐照度数据,确定 AM1.5 的分析波段为 0.28~4 μm,AM0 的分析波段为 0.119~2.5 μm。图 2 为根据相关标准中的数据所绘制的原始太阳光谱能量分布曲线。

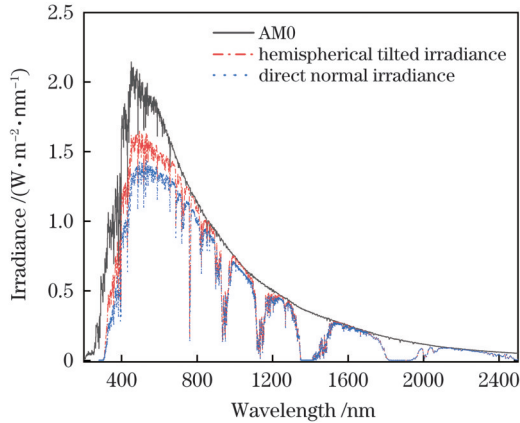


图 2 太阳光谱能量分布曲线
Fig. 2 Solar spectral energy distribution curve

根据太阳光谱辐照度数据,对分析波段的辐照度进行梯形积分:

$$E_{0 \rightarrow \lambda_j} = E_{0 \rightarrow \lambda_{j-1}} + \frac{E_{\lambda_{j-1}} + E_{\lambda_j}}{2} \Delta\lambda_j, \quad (6)$$

式中: $\Delta\lambda_j = \lambda_j - \lambda_{j-1}$ 为波长间隔; E_{λ_j} 为 λ_j 波长的辐照度值; j 对所有数据点进行累加求和。

由此得到分析波段的光谱辐射总照度,如表 2 所示。

表 2 太阳光谱分析波段辐射总照度

Table 2 Solar spectral total irradiance of analyzed band
unit: $W \cdot m^{-2}$

Type of solar spectrum	AM0	AM1.5	
		Direct normal irradiance	Hemispherical tilted irradiance
Total irradiance	1320.46	900.17	1000.40

原始数据中 AM0 光谱数据的 0.119~2.5 μm 的波长间隔为 2 nm。为使计算更加准确,采用三次样条插值方法对原始数据点进行插值,将区间转换为波长 0.119~2.5 μm、间隔为 1 nm 的数据点,插值模型的太阳辐射总照度经积分后为 1320.45 W/m^2 ,误差小于万分之一,满足光谱分析的要求。AM1.5 原始数据点的波长间隔为 1 nm,无需进行插值,同时考虑 AM1.5 的半球向日射辐照度包括了法向直接日射辐照度,其光

谱辐照度总值更大,因此采用半球向光谱辐照度数据进行分析。

4.2 激光材料吸收光谱与太阳光谱的重叠效率计算

激光材料的吸收效率与吸收系数和吸收长度密切相关。吸收长度相同时,吸收系数越大,吸收效率越高;即使吸收系数很小,经过足够长的路径吸收后,吸收效率 η_A 也会接近理论极限 100%,此时太阳光谱的匹配效率仅受限于材料的吸收光谱与太阳光谱的重叠效率。因此,在研究太阳光谱匹配效率随吸收长度的变化之前,有必要确定光谱匹配效率的理论极限,即计算激光材料的吸收光谱与太阳辐射光谱之间的重叠效率 η_P 。

三种激光材料分别为 1% (掺杂原子数分数) Nd:YAG 晶体^[25]、0.1% Cr:1% Nd:YAG 陶瓷^[26] 以及 0.1% Ce:1.1% Nd:YAG 晶体^[10]。图 3 为材料的吸收光谱图以及太阳光在 300~1000 nm 波段的辐射光谱图。本文在两种太阳光模型下计算了这三种激光材料的吸收波段与太阳光谱的重叠效率,三种材料的分析波段以及相应的计算结果如表 3 所示。

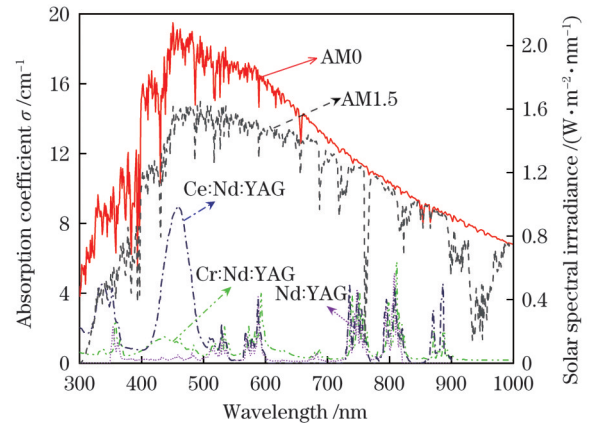


图 3 激光材料的吸收光谱
Fig. 3 Absorption spectra of laser materials

4.3 三种激光材料的太阳光谱匹配效率计算

基于 Nd:YAG、Cr:Nd:YAG 以及 Ce:Nd:YAG 激光材料的吸收光谱,建立各材料的吸收系数数据库,分析三种材料在两种太阳光谱模型下,光谱匹配效率随吸收长度的变化。图 4 和图 5 分别为在 AM1.5 和 AM0 太阳光谱模型下,各材料的太阳光谱匹配效率随吸收长度的变化,图中标注了三种材料的光谱匹配效率极限值以及在接近光谱匹配效率极限值时所对应的吸收长度。

5 分析与讨论

5.1 太阳光谱匹配效率曲线

从曲线变化趋势来看,Nd:YAG、Cr:Nd:YAG 以及 Ce:Nd:YAG 三种材料的太阳光谱匹配效率随吸收长度的变化有相同的曲线特征。通过曲线拟合,光谱匹配曲线有着形如下式的变化规律:

表 3 激光材料吸收光谱与太阳光谱的重叠效率计算

Table 3 Overlapping efficiency calculation of laser materials' absorption spectra and solar spectrum

Laser material	Absorption band /nm	AM1.5 spectral analysis			AM0 spectral analysis		
		$\int_{\lambda_i}^{\lambda_j} P_{\lambda} d\lambda / (W \cdot m^{-2})$	$\sum \int_{\lambda_i}^{\lambda_j} P_{\lambda} d\lambda / (W \cdot m^{-2})$	$\eta_P / \%$	$\int_{\lambda_i}^{\lambda_j} P_{\lambda} d\lambda / (W \cdot m^{-2})$	$\sum \int_{\lambda_i}^{\lambda_j} P_{\lambda} d\lambda / (W \cdot m^{-2})$	$\eta_P / \%$
Nd:YAG	515-540	37.955			46.355		
	565-595	44.434			56.491		
	735-765	32.438	173.378	17.34	37.941	203.121	15.40
	795-825	29.934			33.297		
	855-885	28.617			29.037		
Cr:Nd:YAG	400-490	123.894			166.711		
	515-540	37.955			46.355		
	560-630	102.839	355.677	35.55	124.171	437.512	33.13
	735-765	32.438			37.941		
	795-825	29.934			33.297		
Ce:Nd:YAG	855-885	28.617			29.037		
	315-365	21.245			44.731		
	400-500	139.579			186.222		
	515-540	37.955			46.355		
	565-595	44.434	334.202	33.41	56.491	434.737	32.92
Ce:Nd:YAG	735-765	32.438			37.941		
	795-825	29.934			33.297		
	855-885	28.617			29.037		

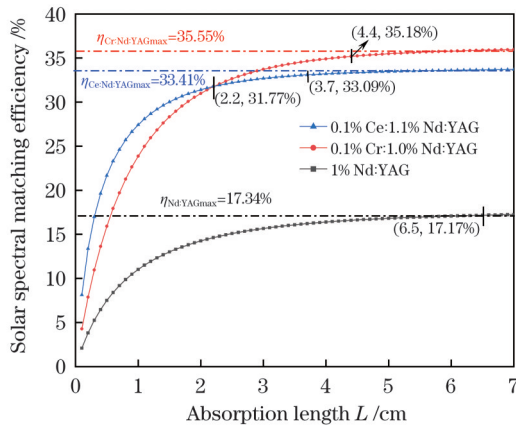


图 4 AM1.5 模型下 Nd:YAG、Cr:Nd:YAG、Ce:Nd:YAG 的太阳光谱匹配效率随吸收长度的变化

Fig. 4 Variation of solar spectral matching efficiency of Nd:YAG, Cr:Nd:YAG and Ce:Nd:YAG with absorption length under AM1.5 model

$$\eta_R = a \cdot \exp(-bL) + c. \quad (7)$$

式(7)中的参数 c 具有实际的物理意义,即光谱匹配效率 η_R 的极限值。光谱匹配效率曲线的变化率随吸收长度的增加逐渐减小,当吸收长度达到 5 cm 后,匹配效率几乎不再增加,达到极限。

5.2 不同材料之间的对比分析

在两种太阳光谱模型下,Cr:Nd:YAG 和 Ce:Nd:YAG 的太阳光谱匹配效率明显高于 Nd:YAG,约为

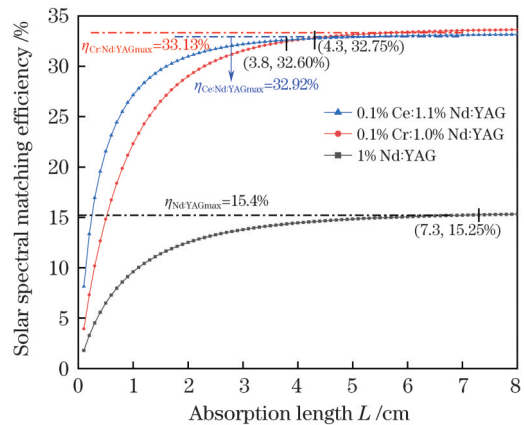


图 5 AM0 模型下 Nd:YAG、Cr:Nd:YAG、Ce:Nd:YAG 的太阳光谱匹配效率随吸收长度的变化

Fig. 5 Variation of solar spectral matching efficiency of Nd:YAG, Cr:Nd:YAG and Ce:Nd:YAG with absorption length under AM0 model

Nd:YAG 的 2 倍,因此 Cr^{3+} 和 Ce^{3+} 的引入有效拓宽了材料对太阳光谱的吸收波段,使激光材料能够吸收更多太阳光辐射,进而促进了太阳光泵浦激光器对太阳光的利用和转换。

为进一步分析不同材料的优劣,本文比较了三种材料在接近太阳光谱匹配效率极限时,即达到光谱匹配效率极限值的 99% 时,所需经过的吸收长度。通过曲线图分析,在 AM1.5 模型下 Nd:YAG、Cr:Nd:YAG

以及 Ce:Nd:YAG 接近光谱匹配效率极限值时,吸收长度分别为 6.5 cm、4.4 cm 和 3.7 cm,在 AM0 模型下对应的吸收长度分别为 7.3 cm、4.3 cm 和 3.8 cm。在大多数端侧混合泵浦系统中,泵浦光在激光材料的端面以及靠近端面边缘的位置入射,传输路径呈“Z”字形,其通过的光学吸收长度一般大于激光材料的实际长度。随着激光材料长度的增加,泵浦光在材料中的散射损耗会越来越大,热效应会更明显,从而反过来降低激光器的输出功率。Dinh 等^[5]和关哲等^[6]采用了近 100 mm 长的 Nd:YAG 晶体做实验,后者为减小热损失在晶体棒末端键合 20 mm 长的 YAG 晶体,Liang 等^[7-8]采用 35 mm 长的 Cr:Nd:YAG 陶瓷和 25 mm 长的 Ce:Nd:YAG 晶体做实验,也提高了太阳光泵浦激光器的输出性能。激光材料的尺寸设计既要使材料能够充分吸收泵浦光,又要尽可能减少泵浦光在激光材料中的散射损耗,同时腔体的设计也影响材料对泵浦光的吸收。本文从激光材料对泵浦光的吸收能力方面,探讨了激光材料与太阳光的光谱匹配效率随吸收长度的变化,所研究的吸收长度为激光材料的长度参数设计提供了可供参考的最大值。

Ce:Nd:YAG 材料在接近光谱匹配效率极限值时所需的吸收长度是最短的,在激光器中其双程的散射损耗也比同等条件下的 Nd:YAG 和 Cr:Nd:YAG 低,因此以 Ce:Nd:YAG 晶体作为太阳光泵浦激光器中的泵浦材料,能够在最短的材料长度下最大化地提高太阳光的利用率,有望进一步改善太阳光泵浦激光器的输出性能。

5.3 两种太阳光谱模型下材料吸收特性的比较

本文采用 ASTM 提供的两种太阳光谱辐照度模型对太阳光泵浦激光材料的光谱匹配效率进行分析。从计算结果看,AM0 模型下三种材料的光谱匹配效率值均低于 AM1.5 模型下的值,这是由于太阳光受大气中的水蒸气、气溶胶和灰尘等散射,同时被大气中的氧、臭氧、水蒸气和二氧化碳吸收^[27],到达地面后的 AM1.5 太阳辐射光谱与在地球外的 AM0 辐射光谱的光谱线型相比有了变化。从图 2 太阳光谱能量分布来看,波长大于 900 nm 时 AM1.5 光谱的衰减量更多,而对激光材料起有效泵浦的波段在 300~900 nm 的可见光波段,因此尽管 AM0 光谱的总太阳辐照度大,但 AM1.5 光谱中能够被激光材料吸收的有用的辐照度量占总太阳光谱辐照度量的比重更大,光谱匹配效率也就整体高于 AM0 光谱模型。但是从总辐照度量来看,激光材料在 AM0 光谱下可吸收的总辐射量仍大于 AM1.5 光谱的,如果将太阳光泵浦激光器系统放置于太空环境下工作,将会有更多有效波段的太阳辐射进入激光谐振腔中,进而被转换为激光输出。这一分析结果有利于太阳光泵浦激光器的研究工作进一步向太空拓展。

6 结 论

本文从太阳光泵浦激光材料的理论出发,研究了三种常用的太阳光泵浦激光材料 Nd:YAG、Cr:Nd:YAG 以及 Ce:Nd:YAG 的能级结构,系统地计算了在空间太阳辐射光谱 AM0 和地面太阳辐射光谱 AM1.5 两种太阳光谱模型下,激光材料吸收带内的太阳光辐照量占整个太阳光总辐照量的百分比。在 AM1.5 地面太阳光谱下,Nd:YAG、Cr:Nd:YAG、Ce:Nd:YAG 三种激光材料的重叠效率分别为 17.34%、35.55%、33.41%;在 AM0 空间太阳光谱下,三种材料的重叠效率分别为 15.4%、33.13%、32.92%。AM1.5 太阳光谱模型下的重叠效率均略高于 AM0 太阳光谱模型下的值,表明 AM1.5 光谱中能够被激光材料吸收的有用的辐照度量占总太阳光谱辐照度量的比重更大。在此基础上,考虑了激光材料在不同波段的吸收系数,将其作为修正因子引入到重叠效率中,分析了经吸收系数修正后,激光材料吸收带的太阳光谱匹配效率随吸收长度的变化。在接近光谱匹配效率的极限值时,AM1.5 模型下 Nd:YAG、Cr:Nd:YAG、Ce:Nd:YAG 所需要的吸收长度分别为 6.5 cm、4.4 cm 和 3.7 cm,AM0 模型下所需要的吸收长度分别为 7.3 cm、4.3 cm 和 3.8 cm。在兼顾激光材料的太阳光谱匹配效率和泵浦光在材料内部的散射损耗的情况下,激光材料实际长度的设计不应超过本文所研究的吸收长度。这一分析为激光材料的长度参数设计提供了可供参考的最大值。同时,由于 Ce:Nd:YAG 晶体计算出的吸收长度是最短的,预计泵浦光在该材料中传输时引入的双程散射损耗也是最低的,因此 Ce:Nd:YAG 晶体有望进一步改善太阳光泵浦激光器的整体性能。本文研究了两种太阳光谱模型与激光材料的光谱匹配,其中 AM1.5 太阳光谱分析结果适用于太阳光泵浦激光器在地面的研究工作,AM0 光谱分析结果有利于将太阳光泵浦激光器进一步向太空拓展。

参 考 文 献

- [1] Young C G. A Sun-pumped CW one-watt laser[J]. Applied Optics, 1966, 5(6): 993-997.
- [2] Xu P, Yang S H, Zhao C M, et al. High-efficiency solar-pumped laser with a grooved Nd:YAG rod[J]. Applied Optics, 2014, 53(18): 3941-3944.
- [3] Liang D W, Almeida J, Vistas C R, et al. Solar-pumped Nd:YAG laser with 31.5 W/m² multimode and 7.9 W/m² TEM₀₀-mode collection efficiencies[J]. Solar Energy Materials and Solar Cells, 2017, 159: 435-439.
- [4] Vistas C R, Liang D W, Almeida J, et al. Ce:Nd:YAG side-pumped solar laser[J]. Journal of Photonics for Energy, 2021, 11(1): 018001.
- [5] Dinh T H, Ohkubo T, Yabe T, et al. 120 watt continuous wave solar-pumped laser with a liquid light-guide lens and an Nd:YAG rod[J]. Optics Letters, 2012, 37(13): 2670-2672.
- [6] Guan Z, Zhao C, Li J, et al. 32.1 W/m² continuous wave solar-pumped laser with a bonding Nd:YAG/YAG rod and a Fresnel lens[J]. Optics & Laser Technology, 2018, 107: 158-161.
- [7] Liang D W, Vistas C R, Tibúrcio B D, et al. Solar-pumped Cr:

- Nd:YAG ceramic laser with 6.7% slope efficiency[J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2018, 185: 75-79.
- [8] Vistas C R, Liang D W, Garcia D, et al. Ce:Nd:YAG continuous-wave solar-pumped laser[J]. *Optik*, 2020, 207: 163795.
- [9] Garcia D, Liang D W, Vistas C R, et al. Ce:Nd:YAG solar laser with 4.5% solar-to-laser conversion efficiency[J]. *Energies*, 2022, 15(14): 5292.
- [10] Liang D W, Vistas C R, Garcia D, et al. Most efficient simultaneous solar laser emissions from three Ce:Nd:YAG rods within a single pump cavity[J]. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2022, 246: 111921.
- [11] Hasegawa K, Ichikawa T, Takeda Y, et al. Lasing characteristics of refractive-index-matched composite $Y_3Al_5O_{12}$ rods employing transparent ceramics for solar-pumped lasers[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2018, 57(4): 042701.
- [12] 赵彬, 赵长明, 何建伟, 等. 太阳光抽运固体激光工作物质的研究[J]. *光学学报*, 2007, 27(10): 1797-1801.
- Zhao B, Zhao C M, He J W, et al. The study of active medium for solar-pumped solid-state lasers[J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, 27(10): 1797-1801.
- [13] 张军斌, 黄志云. 太阳光泵浦固体激光阈值的理论分析[J]. *中国光学*, 2016, 9(2): 241-248.
- Zhang J B, Huang Z Y. Theoretical analysis on threshold of solar pumped solid state lasers[J]. *Chinese Optics*, 2016, 9(2): 241-248.
- [14] Li T, Zhou T Y, Cao Y F, et al. Optical properties and energy transfer performances in high quality Cr,Nd:YAG transparent laser ceramics for solar pumped lasers[J]. *Optics Express*, 2022, 30(6): 8762-8776.
- [15] Hasegawa K, Ichikawa T, Mizuno S, et al. Energy transfer efficiency from Cr^{3+} to Nd^{3+} in solar-pumped laser using transparent Nd/Cr: $Y_3Al_5O_{12}$ ceramics[J]. *Optics Express*, 2015, 23(11): A519-A524.
- [16] Meng J X, Li J Q, Shi Z P, et al. Efficient energy transfer for Ce to Nd in Nd/Ce codoped yttrium aluminum garnet[J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 93(22): 221908.
- [17] Li Y K, Zhou S M, Lin H, 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[J]. *Optical Materials*, 2010, 32(9): 1223-1226.
- [18] ASTM International. Standard solar constant and zero air mass solar spectral irradiance tables: ASTM: E490-00a[S]. West Conshohocken: ASTM International, 2014.
- [19] ASTM International. Standard tables for reference solar spectral irradiances: direct normal and hemispherical on 37° tilted surface: ASTM G173-03[S]. West Conshohocken: ASTM International, 2012.
- [20] W. 克希耐尔. 固体激光工程[M]. 孙文, 江泽文, 程国祥, 译. 北京: 科学出版社, 2002: 23-77.
- Koechner W. Solid-state laser engineering[M]. Sun W, Jiang Z W, Cheng G X, Transl. Beijing: Science Press, 2002: 23-77.
- [21] Zhang H L, Sun D L, Luo J Q, et al. Influence of Cr^{3+} doping on the spectroscopies and laser performance of Cr, Nd:YAG crystal operated at $1.06\ \mu m$ [J]. *Optical Engineering*, 2019, 58(2): 027116.
- [22] 袁明星, 周天元, 周伟, 等. 太阳光直接泵浦固体激光器研究进展[J]. *发光学报*, 2021, 42(1): 10-27.
- Yuan M X, Zhou T Y, Zhou W, et al. Research progress of solar directly pumped solid-state laser[J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 2021, 42(1): 10-27.
- [23] Tai Y P, Zheng G J, Wang H, et al. Near-infrared quantum cutting of Ce^{3+} - Nd^{3+} co-doped $Y_3Al_5O_{12}$ crystal for crystalline silicon solar cells[J]. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 2015, 303/304: 80-85.
- [24] Samuel P, Yanagitani T, Yagi H, et al. Efficient energy transfer between Ce^{3+} and Nd^{3+} in cerium codoped Nd:YAG laser quality transparent ceramics[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2010, 507(2): 475-478.
- [25] Yagi H, Yanagitani T, Yoshida H, et al. Highly efficient flashlamp-pumped Cr^{3+} and Nd^{3+} codoped $Y_3Al_5O_{12}$ ceramic laser [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2006, 45(1A): 133-135.
- [26] Shen Z C, Lu Y, Lu J Y, et al. Development of solar-pumped solid-state lasers[C]//2011 Academic International Symposium on Optoelectronics and Microelectronics Technology, October 12-16, 2011, Harbin, China. New York: IEEE Press, 2011: 8-11.
- [27] 赵长明. 太阳光泵浦激光器[M]. 北京: 国防工业出版社, 2016: 109-117.
- Zhao C M. Solar pumped lasers[M]. Beijing: National Defense Industry Press, 2016: 109-117.

Spectral Matching of Nd:YAG, Cr:Nd:YAG and Ce:Nd:YAG Laser Materials Under Solar Pumping

Zhang Jia, Zhao Changming*, Cai Zitao, Zhao Ziyin

School of Optics and Photonics, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China

Abstract

Objective Solar-pumped laser is a device that directly converts sunlight into laser. It has the advantages of reliable system structure, few energy conversion links, and efficient energy transmission from sunlight to laser. Improving the sunlight convergence system, designing an effective pump cavity and finding suitable laser materials are useful to improving the collection efficiency and conversion efficiency of the solar-pumped laser system for sunlight. Sunlight is a wide-spectrum light source, while the bandwidth of the absorption band of the laser material is limited, and the laser materials with different doping ions and ion concentrations have different absorption capacities for sunlight, so the utilization and conversion of sunlight by solar-pumped lasers are limited. Studying the matching of different laser materials with the solar spectrum and the influence of the length of the laser material on the spectral matching is helpful to analyzing the potential of different materials in the solar-pumped laser, and providing a reference for the parameter design of the length of the laser material. In this paper, Nd:YAG, Cr:Nd:YAG and Ce:Nd:YAG laser materials widely used in solar-pumped lasers are taken as the research objects. Based on the analysis of their energy level structures, the spectral matching of three laser materials under solar pumping is analyzed by establishing a refined solar spectral model, and their application potential in solar-pumped lasers is discussed.

Methods Based on the theory of solar-pumped laser materials, the energy level structures of Nd:YAG, Cr:Nd:YAG and Ce:Nd:

YAG are analyzed, and the absorption bands of the three laser materials are determined. Then, the solar spectral data models are established by using the space-application-oriented solar spectral irradiance standard AM0 and the ground-application-oriented solar spectral irradiance standard AM1.5 provided by ASTM International. The overlapping efficiency between the solar radiation spectrum and the laser material absorption spectrum is calculated under the two models. On this basis, the absorption coefficient of the laser material is introduced into the overlapping efficiency. The variation of solar spectral matching efficiency of laser materials with absorption length after absorption coefficient correction is analyzed. Finally, the advantages of Nd:YAG, Cr:Nd:YAG and Ce:Nd:YAG under solar pumping are compared by analyzing the absorption length required by the three materials when approaching the solar spectrum matching limit.

Results and Discussions Under the AM1.5 ground solar spectrum model, the overlapping efficiencies between the solar radiation spectrum and the laser material absorption spectrum for Nd:YAG, Cr:Nd:YAG, and Ce:Nd:YAG are 17.34%, 35.55%, and 33.41%, respectively. Under the AM0 space solar spectrum model, the overlapping efficiencies are 15.4%, 33.13%, and 32.92%, respectively (Table 3). The overlapping efficiency under the AM1.5 solar spectrum model is slightly higher than that under the AM0 solar spectrum model, indicating that the useful irradiation amount absorbed by laser materials in the AM1.5 model accounts for a larger proportion of the total solar spectrum irradiation. After the absorption efficiency is introduced, the spectral matching efficiency changes exponentially with the absorption length for the three laser materials. The solar spectral matching efficiencies of Cr:Nd:YAG and Ce:Nd:YAG are significantly higher than that of Nd:YAG, about doubled. When approaching the solar spectral matching limit, the absorption lengths required for Nd:YAG, Cr:Nd:YAG, and Ce:Nd:YAG under the AM1.5 model are 6.5 cm, 4.4 cm, and 3.7 cm, respectively (Fig. 4). Under the AM0 model, the corresponding required absorption lengths are 7.3 cm, 4.3 cm, and 3.8 cm, respectively (Fig. 5). Considering the solar spectral matching efficiency of the laser material and the scattering loss of the pump light inside the material, the actual length of the laser material should not exceed the absorption length studied. This analysis provides a maximum value for the design of the length of the laser material.

Conclusions In this paper, three kinds of laser materials, Nd:YAG, Cr:Nd:YAG and Ce:Nd:YAG, are taken as the research objects. Two solar spectral models oriented to space application and ground application are adopted to calculate the overlapping efficiency between solar radiation spectrum and material absorption spectrum. The absorption coefficient of laser material is then introduced into the overlapping efficiency, and the relationship between the solar spectral matching efficiency of laser material and the absorption length is analyzed after the absorption coefficient is corrected. When approaching the spectral matching efficiency limit, the absorption lengths of Nd:YAG, Cr:Nd:YAG and Ce:Nd:YAG in the ground solar spectrum model are 6.5 cm, 4.4 cm and 3.7 cm, respectively, and the absorption lengths in the space solar spectrum model are 7.3 cm, 4.3 cm and 3.8 cm, respectively. The absorption length studied provides a maximum value for the length parameter design of laser materials. At the same time, the calculated length of Ce:Nd:YAG crystal is the shortest, and it is expected that the scattering loss introduced in this material will be the smallest. Therefore, using Ce:Nd:YAG crystal as the laser material is expected to further improve the output performance of solar-pumped lasers.

Key words lasers; solid-state lasers; laser materials; solar pumping; spectral matching