

Nd:GSAG 晶体生长、结构、光谱及激光性能

黄磊^{1,2,3}, 张庆礼^{2,3*}, 罗建乔^{2,3}, 刘文鹏^{2,3}, 张俊蕊^{1,2,3}, 窦仁勤^{2,3}, 孙贵花^{2,3}, 权聪^{2,3}, 陈迎迎^{2,3,4}, 丁守军^{2,3,5},
刘耀^{1,2,3}, 樊颖^{2,3,6}

¹中国科学技术大学环境科学与光电技术学院, 安徽 合肥 230026;

²中国科学院合肥物质科学研究院安徽光学精密机械研究所安徽省光子器件与材料重点实验室, 安徽 合肥 230031;

³先进激光技术安徽省实验室, 安徽 合肥 230037;

⁴中国科学技术大学研究生院科学岛分院, 安徽 合肥 230026;

⁵安徽工业大学微电子与数据科学学院, 安徽 马鞍山 243002;

⁶安徽大学物质科学与信息技术研究院, 安徽 合肥 230061

摘要 Nd:GSAG 是重要的 942 nm 固体激光工作物质, 在机载和星载水汽检测中有重要的应用。生长了低浓度 Nd:GSAG 晶体, 通过与高掺杂浓度 Nd:GSAG、Nd:YAG 进行对比, 研究了它的结构、光谱和激光性能。掺杂原子数分数为 0.94% 的 Nd:GSAG 晶体在 808.5 nm 处的吸收系数为 3.79 cm^{-1} , 吸收截面为 $3.41 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$, $^4F_{3/2}$ 上能级寿命为 275 μs , 比掺杂原子数分数为 1.20% 的 Nd:GSAG 晶体高出 22 μs 。掺杂原子数分数为 0.94% 的 Nd:GSAG 晶体在 942 nm 和 1060 nm 处的激光半峰全宽分别为 0.53 nm 和 0.59 nm, 比 Nd:YAG 在 946 nm 和 1064 nm 处的激光半峰全宽 0.66 nm 和 0.64 nm 窄, 表明其光波单色性更好。掺杂原子数分数为 0.94% 的 Nd:GSAG 在 942 nm 处的斜效率和光光转换效率分别为 5.5% 和 4.2%, 优于 Nd:YAG 在 946 nm 处的斜效率 (5.0%) 和光光转换效率 (3.2%), 但在 1.06 μm 附近低于 Nd:YAG。942 nm 处于水汽的吸收波段, 上述结果表明 Nd:GSAG 的 942 nm 波段激光有望成为水汽检测的优良光源。

关键词 激光光学; 固体激光; Nd:GSAG; 光谱

中图分类号 TN244 **文献标志码** A

DOI: 10.3788/CJL230665

1 引言

Nd:GSAG 激光晶体具有低阈值、高增益和高效率等优点, 通过 Nd^{3+} 离子的 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{9/2}$ 跃迁能够直接获得 942 nm 波长激光, 可应用于水汽检测, 因而得到广泛关注^[1-4]。

大气水汽对温室效应、水循环、天气现象、大气物理化学反应以及空气质量等的影响非常显著, 因而大气水汽廓线检测十分重要^[5]。差分吸收激光雷达 (DIAL) 是一种高精度高时空分辨率的大气水汽检测系统^[6], 在机载和星载平台上有着重重要的应用^[7-8]。水汽对 940 nm 波长附近 (935 nm/936 nm, 942 nm/943 nm, 944 nm) 的光的吸收率较高, 且受其他气体的干扰较少, 940 nm 波长光适用于激光雷达发射光源。拉曼移频器、光学参量振荡器 (OPO) 和钛蓝宝石激光器可以实现 940 nm 附近波段的激光输出, 但这些系统昂贵且复杂, 稳定性不足, 它们在机载和星载水汽检测系统中

的应用受到限制^[9-10]。Nd:GSAG 具有优秀的抗辐照性能^[11-13], 能适应太空环境, 可直接通过激光二极管 (LD) 泵浦产生波长为 942 nm 的激光, 具有效率和稳定性高、寿命长、重量轻、体积小等优点, 适用于机载和星载平台。Lin 等^[14]实现了可调谐种子注入 Nd:GSAG 调 Q 单频激光器, 可调谐范围为 942.38~943.10 nm, 包括水汽吸收中线 942.44 nm。Eichler 等^[15]对比了四种可用于水汽差分吸收激光雷达的光源, 激光波长位于 940 nm 附近, 其中拉曼激光系统的激光效率和能量过低, 钛蓝宝石激光器很难做到紧凑, Nd:YGG 和 Nd:GSAG 更适用, 但 Nd:YGG 会同时产生 935 nm 和 938 nm 激光, 导致系统误差。水汽检测差分吸收激光雷达对发射激光的波长稳定性、线宽和光谱纯度的要求非常高, 因此需要进一步研究优良 942 nm 激光工作物质 Nd:GSAG 的光谱和激光性能。

在激光晶体中, 在 Nd^{3+} 的掺杂浓度达到某一定值之后, 掺杂离子相互间的作用增强, 无辐射跃迁概率变

收稿日期: 2023-03-30; 修回日期: 2023-04-12; 录用日期: 2023-04-19; 网络首发日期: 2023-04-29

基金项目: 国家自然科学基金 (51172236, 51802307, 52272011)、先进激光技术安徽省实验室开放研究基金 (AHL-20220-ZR-04, AHL-2021-KF-07)、安徽省重大科技专项 (202203a05020002)、中国科学院青年创新促进会 (2023463)

通信作者: *zql@aiofm.ac.cn

大,激光效率下降,即发生浓度猝灭^[16]。2012年,苏静等^[17-20]采用共沉淀法合成Nd:GSAG纳米粉体,发光强度随Nd³⁺掺杂浓度的增加而发生显著变化,当Nd³⁺掺杂原子数分数达到1.5%时发生浓度猝灭,并测得掺杂原子数分数为1.5%的Nd:GSAG纳米粉体在942 nm和1064 nm处的荧光寿命分别为0.529 ms和0.512 ms^[9]。掺杂Nd³⁺的石榴石激光晶体的⁴F_{3/2}能级的荧光寿命随着Nd³⁺掺杂浓度的降低而上升,掺杂原子数分数为3%的Nd:YAG的荧光寿命为110~120 μs,而掺杂原子数分数为0.6%的Nd:YAG的荧光寿命超过其2倍,为249 μs。同时,通过降低石榴石激光晶体中Nd³⁺的掺杂浓度,有望改善激光光束质量^[21-22],降低热透镜效应^[23-24]。因此,优化Nd:GSAG掺杂浓度有望提高其942 nm激光效率,改善光束质量。

本文采用提拉法生长掺杂原子数分数为0.94%的Nd:GSAG晶体,测定晶体结构、透过光谱、发射光谱和荧光寿命。使用808 nm激光抽运晶体,输出1060 nm和942 nm激光,获得激光光谱、激光功率和光束质量数据。在实验的过程中,使用实验室已有的掺杂原子数分数为1.20%的Nd:GSAG晶体及掺杂原子数分数为0.6%和1.0%的Nd:YAG晶体作为对比样品。

2 实验

2.1 晶体生长和样品加工

根据Nd_{0.045}Gd_{2.955}Sc₂Al₃O₁₂的化学计量比,称取质量分数为99.999%的初始原料Gd₂O₃、Sc₂O₃、Al₂O₃、Nd₂O₃,均匀混合它们,并压成圆块状,在马弗炉中煅烧,获得多晶原料。然后使用单晶炉生长晶体(等径部分直径为50 mm,长度为70 mm)。生长出的毛坯晶体为淡棕色,退火后为淡紫色,如图1(a)、(b)所示,晶体完整,透明度良好,没有裂纹,散射点很少。

垂直于晶体生长方向切割,并加工成双面抛光晶

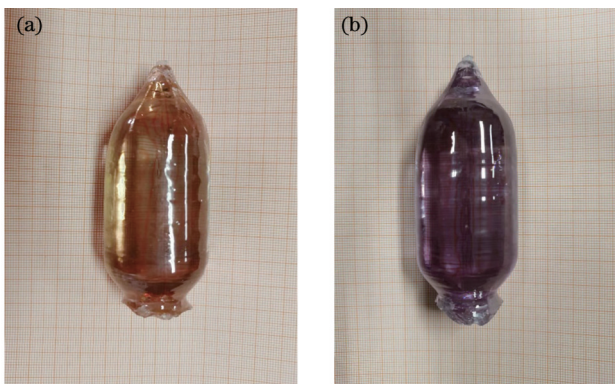


图1 提拉法生长的掺杂原子数分数为0.94%的Nd:GSAG晶体。(a)退火前;(b)退火后

Fig. 1 Nd:GSAG crystal with doping atomic fraction of 0.94% grown by Czochralski method. (a) Before annealing; (b) after annealing

体片,厚度为1.5 mm,用于晶体的结构和光谱测试。加工了尺寸为2 mm×2 mm×6 mm的双端面抛光的晶体块,用于激光实验。

2.2 晶体结构和光谱测试

使用激光剥蚀(LA)-电感耦合等离子体质谱仪系统测量晶体组分。使用X射线衍射仪对晶体测试片进行单晶摇摆(XRC)测试,扫描步长为0.005°,衍射角度(θ)的范围为9.37°~11.355°。使用X射线衍射仪对晶体研磨粉末进行X射线粉末衍射(XRD)测试,扫描范围为10°~90°,扫描步长为0.0167462°。使用紫外/可见/近红外分光光度计测量透过光谱,使用稳态/瞬态荧光光谱仪获得荧光寿命和荧光发射光谱,前者测试过程中使用光学参量振荡器(OPO)激发晶体,后者测试过程中使用808 nm光纤耦合激光器激发晶体。

2.3 激光实验

图2为LD端面泵浦的实验装置图,泵浦源为808 nm连续波激光器,谐振腔为长度为10 mm的平平腔。输入镜和输出镜均经过镀膜处理,输入镜在808 nm处的透过率为95%,在942 nm处的透过率为0.015%,在1060 nm处的透过率为0.15%。1060 nm激光实验对应的输出镜(M1)在1060 nm处的透过率为15%,942 nm激光实验对应的输出镜(M2)在942 nm处的透过率为4.6%,为了防止1060 nm波长的光在谐振腔内振荡,输出镜在1060 nm处的透过率高于90%。激光增益介质的尺寸为2 mm×2 mm×6 mm,其中2 mm×2 mm的端面经精细抛光,未镀膜。实验过程中用于给晶体降温的水冷机将冷却水的温度控制在15℃。

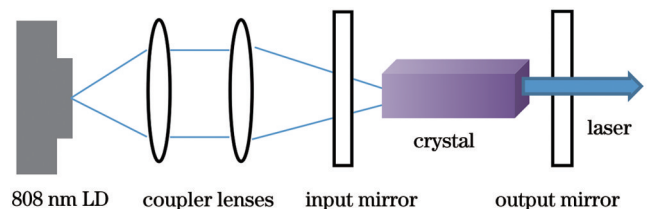


图2 LD端面泵浦激光实验装置

Fig. 2 LD end-pumped laser experimental setup

3 结果与讨论

3.1 晶体结构与组分

对电感耦合等离子体质谱仪的测量结果取平均值,计算出Nd:GSAG晶体的化学式为Nd_{0.025}Gd_{2.64}Sc_{1.79}Al_{3.28}O_{11.60},其中Nd³⁺的掺杂原子数分数为0.94%,实验室已有的高浓度Nd:GSAG晶体中Nd³⁺的掺杂原子数分数为1.20%。

使用X射线衍射仪对1.5 mm厚的测试片进行测试,所得的单晶摇摆曲线如图3所示,为单一衍射峰,峰形良好,没有出现劈裂,半峰全宽仅为0.019°,表明晶体结晶质量优良。

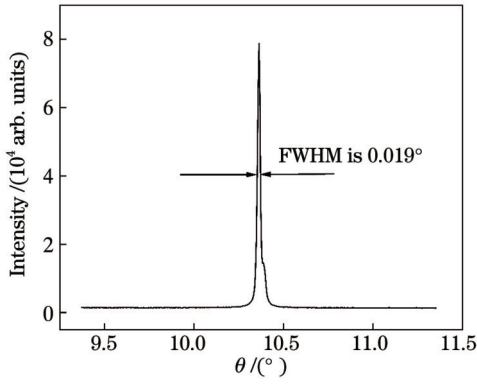


图3 掺杂原子分数为0.94%的Nd:GSAG晶体的单晶摇摆曲线

Fig. 3 Single crystal swing curve of Nd:GSAG crystal with doping atomic fraction of 0.94%

图4是掺杂原子分数为0.94%的Nd:GSAG晶体粉末和GSAG标准卡片ICSD 78052的X射线粉末衍射图^[25],两者吻合良好,表明掺杂原子分数为0.94%的Nd:GSAG晶体与GSAG晶体的结构相同。

以GSAG的结构数据作为初始数据,采用Rietveld方法对Nd:GSAG进行结构精修,如图5所示

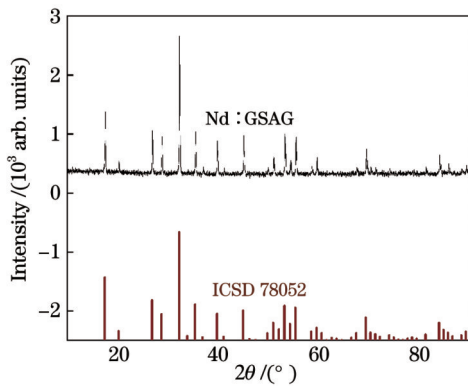


图4 掺杂原子分数为0.94%的Nd:GSAG晶体的X射线粉末衍射图和GSAG标准图谱ICSD 78052

Fig. 4 X-ray powder diffraction pattern of Nd:GSAG crystal with doping atomic fraction of 0.94% and GSAG standard pattern ICSD 78052

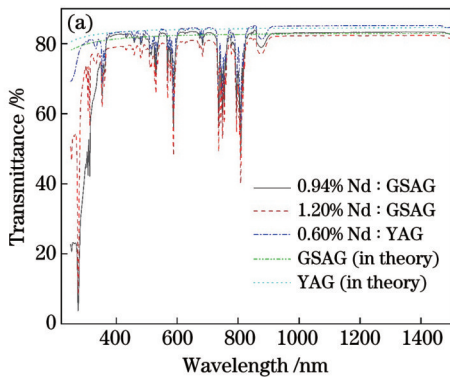


图6 掺杂原子分数为0.94%的Nd:GSAG晶体的透过光谱与吸收光谱。(a)透过光谱;(b)吸收光谱

Fig. 6 Transmission and absorption spectra of Nd:GSAG crystal with doping atomic fraction of 0.94%. (a) Transmission spectra; (b) absorption spectra

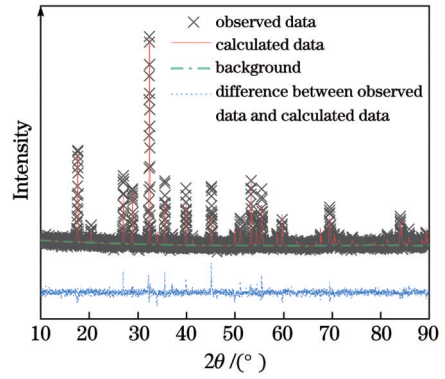


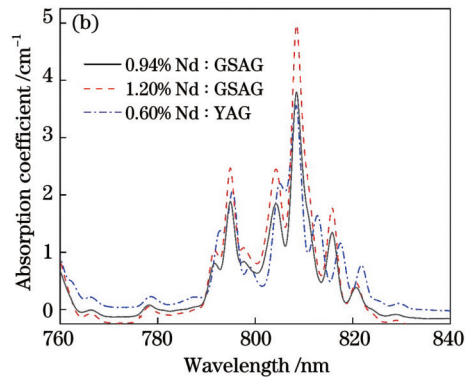
图5 掺杂原子分数为0.94%的Nd:GSAG晶体的全谱拟合
Fig. 5 Full spectrum fitting of Nd:GSAG crystal with doping atomic fraction of 0.94%

示,得到其晶胞参数 $a=b=c=12.4130 \times 10^{-10}$ m,略大于GSAG标准卡片中的 12.3888×10^{-10} m^[25]。这是由于掺杂的Nd³⁺离子半径略大于 0.995×10^{-10} m,取代了离子半径为 0.938×10^{-10} m的Gd³⁺,晶胞参数变大。单一晶胞分子量为6607.753,可以计算出晶体密度为 $5.737 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$,与浮力法测得的 $5.72 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ 非常接近,而浮力法测得的掺杂原子分数为1.20%的Nd:GSAG晶体的密度为 $5.78 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ^[26],GSAG标准卡片中的密度为 $5.66 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ^[25],表明Nd掺杂使晶体密度变大。

3.2 光谱分析

GSAG晶体的Sellmeier方程为 $n^2 = 3.510 + 38578.7 / (\lambda^2 - 15370)$ ^[21],其中, n 为折射率, λ 为入射波长。在非吸收带吸收系数取0,此时透过率公式为 $T = (1 - R) / (1 + R)$,其中, $R = (n - 1)^2 / (n + 1)^2$,表示反射系数,通过计算可以得到非吸收带的理论透过率。

图6(a)为Nd:GSAG与Nd:YAG晶体透过率在波长250~1500 nm范围内的对比,测量步长为1 nm,在250~860 nm范围内,狭缝宽度为2 nm,在860~1500 nm范围内,狭缝宽度随波长变化。在非吸收带,三个晶体的透光性都非常好,且测量结果与理论值接近,以1000 nm处为例,三个晶体的测量值与理



论值的差距分别为 0.34%、0.56% 和 0.68%，说明数据可靠性较高。在 275 nm 处，Nd:YAG 没有吸收峰，而 Nd:GSAG 透过率分别为 3.71% 和 8.45%，这是由于 Nd:YAG 没有 Gd^{3+} 离子吸收。图 6(b) 为 Nd:GSAG 与 Nd:YAG 晶体在波长 760~840 nm 范围内的吸收光谱，对应的透过光谱测量步长为 0.1 nm，狭缝宽度为 2 nm，吸收特性参数如表 1 所示。在最强吸收峰 808.5 nm 处，掺杂原子数分数为 0.6% 的 Nd:YAG 晶体的吸收系数为 3.56 cm^{-1} ，吸收截面为 $4.30 \times$

10^{-20} cm^2 ，吸收峰半峰全宽为 2.79 nm，掺杂原子数分数为 0.94% 和 1.20% 的 Nd:GSAG 晶体的吸收系数分别为 3.79 cm^{-1} 和 4.97 cm^{-1} ，吸收截面分别为 $3.41 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ 和 $3.50 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ ，吸收峰半峰全宽分别为 3.23 nm 和 3.28 nm。掺杂原子数分数为 0.94% 的 Nd:GSAG 晶体因为 Nd^{3+} 的掺杂浓度较低，对 808.5 nm 激光吸收较少，在作为激光增益介质时，可以增加光路方向上晶体的长度，从而减轻晶体的热透镜效应，获得稳定、高功率、高光束质量的激光^[23-24]。

表 1 Nd:GSAG 晶体和 Nd:YAG 晶体的吸收特性参数

Table 1 Absorption characteristic parameters of Nd:GSAG crystals and Nd:YAG crystals

Crystal	Wavelength /nm	Transmittance /%	Absorption coefficient / cm^{-1}	Absorption cross-section /(10^{-20} cm^2)	FWHM /nm
Nd:YAG	808.4	49.19	3.56	4.30	2.79
0.94% Nd:GSAG	808.5	46.52	3.79	3.41	3.23
1.20% Nd:GSAG	808.5	38.95	4.97	3.50	3.28

图 7 为室温下 Nd:GSAG 晶体和 Nd:YAG 晶体的荧光发射图谱，测量步长为 0.1 nm，狭缝宽度为 1 nm。最强发射峰分别为 1060.2 nm 和 1064.2 nm，对应 Nd^{3+} 离子的 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ 跃迁，而与 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ 对应的峰分别为 942.4 nm 和 946 nm。在 1060 nm 和 942 nm 处，掺杂原

子数分数为 1.20% 的 Nd:GSAG 的半峰全宽分别为 2.12 nm 和 1.98 nm，掺杂原子数分数为 0.94% 的 Nd:GSAG 的半峰全宽分别为 2.12 nm 和 1.88 nm，低浓度晶体在 942 nm 处的半峰全宽相对较小，这说明优化 Nd:GSAG 晶体浓度有希望提高 942 nm 激光光波的单色性。

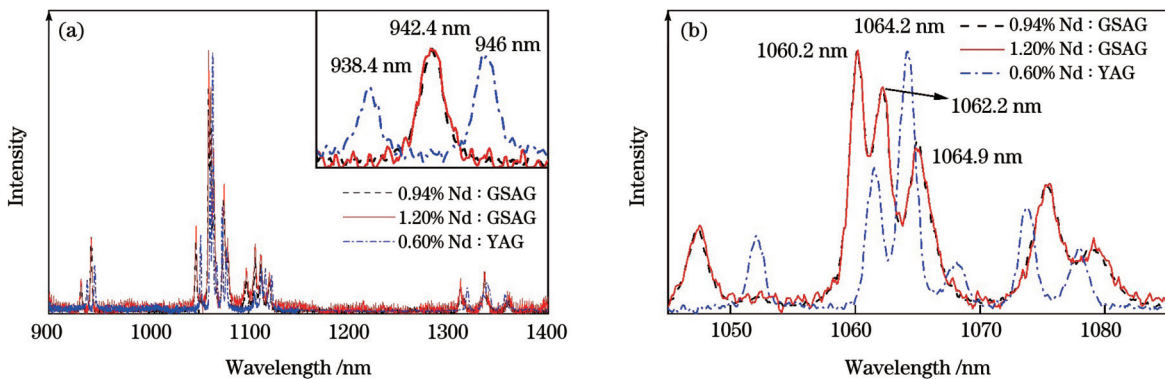


图 7 Nd:GSAG 晶体和 Nd:YAG 晶体的发射光谱。(a) 900~1400 nm; (b) 1045~1085 nm

Fig. 7 Emission spectra of Nd:GSAG crystals and Nd:YAG crystals. (a) 900~1400 nm; (b) 1045~1085 nm

图 8 为室温下 Nd:GSAG 晶体和 Nd:YAG 晶体的上能级 ${}^4F_{3/2}$ 的荧光衰减曲线，掺杂原子数分数为 0.6%

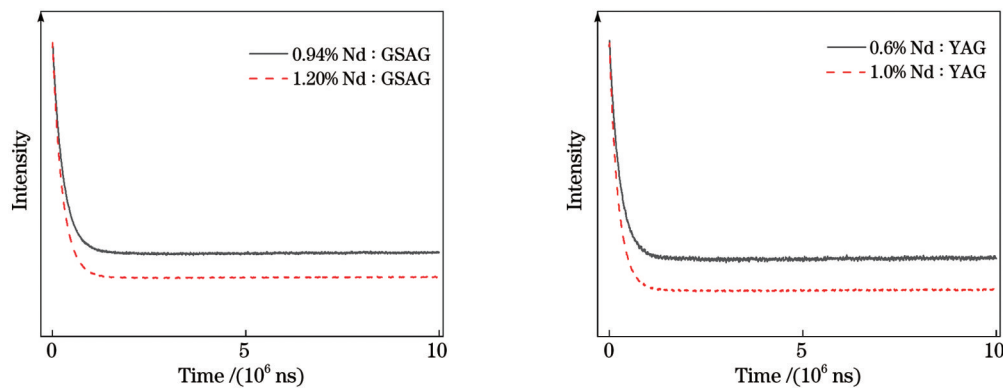


图 8 激光上能级 ${}^4F_{3/2}$ 的荧光寿命衰减曲线。(a) Nd:GSAG; (b) Nd:YAG

Fig. 8 Fluorescence lifetime decay curves of laser upper level ${}^4F_{3/2}$. (a) Nd:GSAG; (b) Nd:YAG

和 1.0% 的 Nd:YAG 的荧光寿命分别为 267 μs 和 230 μs, 掺杂原子数分数为 0.94% 和 1.20% 的 Nd:GSAG 的荧光寿命分别为 275 μs 和 253 μs, 低浓度 Nd:YAG 和 Nd:GSAG 分别高了 37 μs 和 22 μs, 这表明低浓度 Nd:YAG 和 Nd:GSAG 在储能方面表现更为优异。

受激发射截面的计算公式为

$$\sigma = \frac{\lambda^5 \beta I(\lambda')}{8\pi c n^2 \tau \int \lambda I(\lambda') d\lambda'} \quad (1)$$

式中: λ' 为真空中的发射波长; c 为真空中的光速; τ 为能级寿命; β 为荧光分支比; $I(\lambda')$ 为发射带最强发射峰的峰强; $\int \lambda I(\lambda') d\lambda'$ 为整个发射带的积分。 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ 和 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ 跃迁对应的发射带分别为 860~950 nm 和 1030~1130 nm。

在 1060 nm 和 942 nm 处, 掺杂原子数分数为 1.20% 的 Nd:GSAG 的发射截面分别为 $6.14 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ 和 $2.29 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$, 掺杂原子数分数为 0.94% 的 Nd:GSAG 的发射截面分别为 $5.62 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ 和 $2.33 \times$

10^{-20} cm^2 , 低浓度晶体 942 nm 发射截面更高, 这说明优化 Nd:GSAG 晶体浓度有希望提高 942 nm 激光性能。在 1064 nm 和 946 nm 处, 掺杂原子数分数为 0.60% 的 Nd:YAG 的发射截面分别为 $14.22 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ 和 $1.95 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$, Nd:YAG 在 1.06 μm 附近的发射截面更大, 激光性能更优, 而 Nd:GSAG 晶体在 0.94 μm 附近的激光性能更优。

3.3 激光性能

利用 808nm 连续波 LD 抽运掺杂原子数分数为 0.94% 的 Nd:GSAG 晶体和掺杂原子数分数为 0.6% 的 Nd:YAG 晶体, 激光输出波长如图 9 所示, 与荧光发射光谱的发射峰相符。掺杂原子数分数为 0.94% 的 Nd:GSAG 晶体在 940 nm 附近和 1060 nm 附近的激光光谱的半峰全宽皆小于掺杂原子数分数为 0.6% 的 Nd:YAG 晶体, 说明其光波单色性更好, 尤其是 942.3 nm 波长处的半峰全宽仅仅为 0.53 nm, 在应用于差分吸收激光雷达时精度会比较, 意味着其激光光束可能具有非常小的束腰直径^[27]。

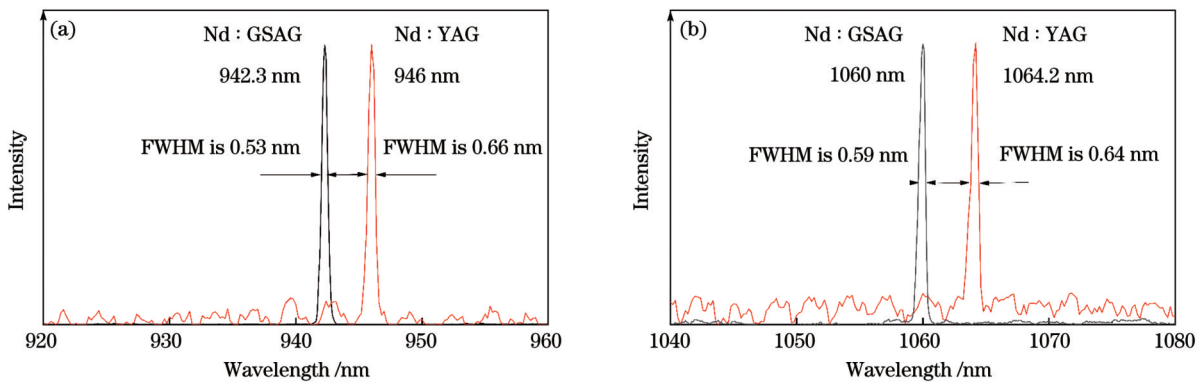


图 9 不同输出镜下掺杂原子数分数为 0.94% 的 Nd:GSAG 晶体和掺杂原子数分数为 0.6% 的 Nd:YAG 晶体的激光输出波长。(a) M2; (b) M1

Fig. 9 Laser output wavelengths of Nd:GSAG crystal with doping atomic fraction of 0.94% and Nd:YAG crystal with doping atomic fraction of 0.6% under different output mirrors. (a) M2; (b) M1

根据文献[26]和[28], 对于 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ 和 ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$ 跃迁, Nd:GSAG 的荧光分支比分别为 0.49 和 0.40, Nd:YAG 的荧光分支比分别为 0.56 和 0.37, 因此, Nd:YAG 更容易产生 1060 nm 附近激光, Nd:GSAG 更容易产生 940 nm 附近激光。图 10 为掺杂原子数分数为 0.94% 的 Nd:GSAG 晶体和掺杂原子数分数为 0.6% 的 Nd:YAG 晶体的激光输出功率随吸收泵浦功率变化的拟合结果。根据拟合结果计算得到的激光性能参数如表 2 所示, Nd:GSAG 晶体的 942 nm 激光的各项参数均优于 Nd:YAG 晶体的 946 nm 激光, Nd:YAG 晶体的 1064 nm 激光的各项参数均优于 Nd:GSAG 晶体的 1060 nm 激光。对于 942 nm 激光, 当输入功率为 9.6 W 时, 获得了最大输出功率 0.54 W, 对应的光光转化效率为 5.6%, 拟合结果的斜效率为 9.1%, 激光阈值为 3.35 W。

采用刀口法测量激光光束质量, 先利用 808 nm 高

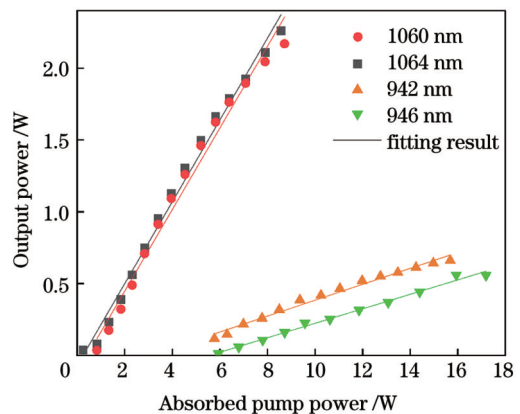


图 10 掺杂原子数分数为 0.94% 的 Nd:GSAG 晶体和掺杂原子数分数为 0.6% 的 Nd:YAG 晶体的激光输出功率

Fig. 10 Laser output powers of Nd:GSAG crystal with doping atomic fraction of 0.94% and Nd:YAG crystal with doping atomic fraction of 0.6%

表 2 掺杂原子数分数为 0.94% 的 Nd:GSAG 晶体和掺杂原子数分数为 0.6% 的 Nd:YAG 晶体的激光实验性能参数

Table 2 Laser experimental performance parameters of Nd:GSAG crystal with doping atomic fraction of 0.94% and Nd:YAG crystal with doping atomic fraction of 0.6%

Crystal	Transition	Wavelength / nm	Fluorescence branching ratio	Emission cross-section / (10^{-20} cm^2)	Laser threshold / W	Slope efficiency / %	Maximum power / W	Light conversion efficiency / %	Pump light absorbance in crystal / %
Nd:GSAG	${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{9/2}$	942	0.40	2.33	3.06	5.5	0.66	4.2	68-83
Nd:YAG		946	0.37	1.95	5.56	5.0	0.56	3.2	68-89
Nd:GSAG	${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$	1060	0.49	5.62	0.42	28.4	2.17	24.9	66-79
Nd:YAG		1064	0.56	14.22	0.25	28.5	2.26	26.4	66-76

透和 942 nm 全反的透镜过滤掉泵浦光, 然后使光束经过焦距为 300 mm 的聚焦透镜, 分别记录水平和垂直两个方向上刀口挡掉 10% 和 90% 激光能量时光斑的位置, 利用差值计算光斑直径。当 940 nm 和 1060 nm 激光的输出功率为 0.4 W 左右时, 光束直径随光斑与聚焦透镜的距离 (d) 变化的拟合曲线如图 11 所示。根据拟合结果计算得到的数据如表 3 所示, 942 nm 激光在水平和垂直方向上的光束质量因子 M_x^2 和 M_y^2 分别

为 2.72 和 3.45, 在水平和垂直方向上的远场发散角 θ_x 和 θ_y 分别为 0.03155 rad 和 0.03491 rad, 在水平和垂直方向上的束腰直径 d_x 和 d_y 分别为 0.1048 mm 和 0.1185 mm。在相同激光输出功率下, 942 nm 和 1060 nm 激光的束腰直径较小, 光束质量较好, 这与其光谱半峰全宽较小相吻合, 同时也意味着束腰附近的激光能量密度非常大。946 nm 激光的光束质量较差, 主要是因为泵浦光的输入功率较高, 热透镜效应较严重。

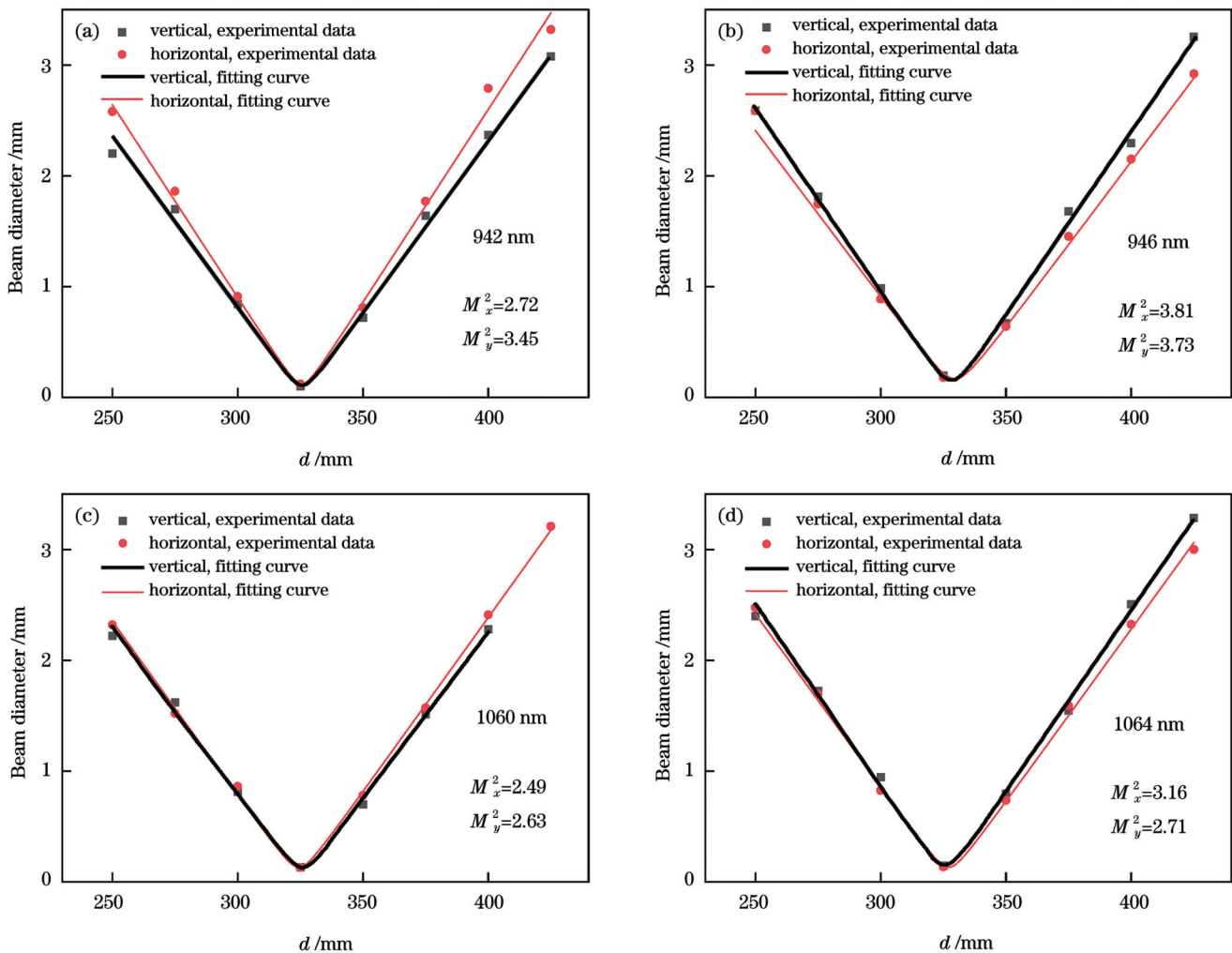
图 11 不同波长激光的光束直径随 d 的变化曲线。(a) 942 nm; (b) 946 nm; (c) 1060 nm; (d) 1064 nmFig. 11 Beam diameter versus d for lasers with different wavelengths. (a) 942 nm; (b) 946 nm; (c) 1060 nm; (d) 1064 nm

表 3 光束质量的拟合结果
Table 3 Fitting results of beam quality

Crystal	Wavelength /nm	FWHM of laser spectrum /nm	Direction	Beam quality factor	Beam divergence angle / rad	Girdle diameter / mm
Nd:GSAG	942	0.53	Horizontal	2.72	0.03155	0.1048
			Vertical	3.45	0.03491	0.1185
	1060	0.59	Horizontal	2.49	0.03029	0.1111
			Vertical	2.63	0.03155	0.1122
Nd:YAG	946	0.66	Horizontal	3.81	0.03335	0.1375
			Vertical	3.73	0.03018	0.1488
	1064	0.64	Horizontal	3.16	0.03295	0.1300
			Vertical	2.71	0.03129	0.1172

4 结 论

生长了低浓度(掺杂原子数分数为 0.94%)Nd:GSAG 晶体,其单晶摇摆曲线的半峰全宽仅为 0.019°, 结晶质量良好。在最强吸收峰 808.5 nm 处,吸收系数为 3.79 cm⁻¹,吸收截面为 3.41×10⁻²⁰ cm²,吸收峰半峰全宽为 3.23 nm。1060 nm 为 808 nm 光激发的最强发射波长,在 1060 nm 和 942 nm 处,Nd:GSAG 的发射截面分别为 5.62×10⁻²⁰ cm²和 2.33×10⁻²⁰ cm²,荧光寿命为 275 μs,比掺杂原子数分数为 1.20%的 Nd:GSAG 晶体高 22 μs,更有利于储能。942 nm 波长激光的光谱半峰全宽仅为 0.53 nm,最大输出功率为 0.54 W,光光转化效率为 5.6%,斜效率为 9.1%,激光阈值为 3.35 W,当激光功率为 0.4 W 时,其水平和垂直方向上的光束质量因子 M_x²和 M_y²分别为 2.72 和 3.45,束腰直径非常小,d_x和 d_y分别为 0.1048 mm 和 0.1185 mm,各项指标皆优于掺杂原子数分数为 0.6%的 Nd:YAG 晶体的 946 nm 激光。结果表明,低掺杂浓度的 Nd:GSAG 晶体的 942 nm 激光性能优良。通过在晶体元件上镀泵浦光和输出光增透膜、提高晶体元件的加工质量、优化掺杂浓度,有望获得性能优异的 942 nm 全固态激光。

参 考 文 献

- [1] Ding S J, Zhang Q L, Lu W C, et al. Growth, defects, mechanical and optical properties of Nd:GSAG and Nd:YSAG laser crystal[J]. *Optik*, 2017, 148: 136-141.
- [2] Kallmeyer F, Wang X, Eichler H J. Tunable Nd:GSAG laser around 943 nm for water vapor detection[J]. *Proceedings of SPIE*, 2009, 7131: 713111.
- [3] Kallmeyer F, Dziedzina M, Schmidt D, et al. Nd:GSAG laser for water vapor detection by lidar near 942 nm[J]. *Proceedings of SPIE*, 2007, 6451: 64510J.
- [4] 许晋瑞,张庆礼,彭方,等. Cr, Nd:GSAG 晶体生长、光谱及 LD 泵浦激光性能研究[J]. *人工晶体学报*, 2017, 46(9): 1653-1659.
Xu J R, Zhang Q L, Peng F, et al. Growth, spectral properties and LD pumped laser performances of Cr, Nd:GSAG crystal[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2017, 46(9): 1653-1659.
- [5] 廖淑君,郜海阳,寇蕾蕾,等. 星载激光雷达探测云与气溶胶的仿真模拟[J]. *激光与光电子学进展*, 2022, 59(10): 1028001.
Liao S J, Gao H Y, Kou L L, et al. Simulation of cloud and aerosol detection based on spaceborne lidar[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2022, 59(10): 1028001.
- [6] 张寅超,陈粟,檀望舒,等. 以水云后向散射系数为边界值的激光雷达气溶胶后向散射系数反演方法[J]. *光学学报*, 2022, 42(24): 2428002.
Zhang Y C, Chen S, Tan W S, et al. Inversion algorithm of aerosol backscattering coefficient with water cloud particle backscattering coefficient as boundary value[J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(24): 2428002.
- [7] 龚威,史硕,陈博文,等. 机载高光谱激光雷达成像技术发展与应用[J]. *光学学报*, 2022, 42(12): 1200002.
Gong W, Shi S, Chen B W, et al. Development and application of airborne hyperspectral LiDAR imaging technology[J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(12): 1200002.
- [8] 刘东,陈斯婕,刘群,等. 星载环境探测激光雷达及其关键技术[J]. *光学学报*, 2022, 42(17): 1701001.
Liu D, Chen S J, Liu Q, et al. Spaceborne environmental detection lidar and its key techniques[J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(17): 1701001.
- [9] Su J, Yao Y J, Liu B, et al. Synthesis, morphology and spectroscopy of Nd:GSAG nano-powders[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2012, 525: 25-27.
- [10] Kallmeyer F, Dziedzina M, Wang X, et al. Nd:GSAG-pulsed laser operation at 943 nm and crystal growth[J]. *Applied Physics B*, 2007, 89(2): 305-310.
- [11] Ding S J, Chen Y Z, Liu W P, et al. A promising high-efficient radiation resistant laser crystal Nd:GSAG[J]. *Infrared Physics & Technology*, 2019, 102: 103005.
- [12] Ding S J, Wang H Y, Liu W P, et al. Enhanced radiation resistant properties of Nd:GSAG laser crystal by co-doping of Cr³⁺[J]. *Journal of Luminescence*, 2019, 213: 249-254.
- [13] Ding S J, Liu W P, Chen Y Y, et al. Effects of the gamma-ray irradiation on the structure, spectral and laser damage threshold of Nd:GSAG crystal[J]. *Optical Materials*, 2019, 95: 109259.
- [14] Lin Z F, Wang X, Kallmeyer F, et al. Single frequency operation of a tunable injection-seeded Nd:GSAG Q-switched laser around 942 nm[J]. *Optics Express*, 2010, 18(6): 6131-6136.
- [15] Eichler H J, Kallmeyer F, Rhee H, et al. Efficient laser systems for 935 and 942 nm for water vapor lidar[J]. *Proceedings of SPIE*, 2007, 6346: 63460Y.
- [16] 黄度,周树华,刘剑,等. 稀土掺杂聚氨酯光固化涂层光转换膜的制备及性能[J]. *高分子材料科学与工程*, 2003, 19(4): 173-176.
Huang D, Zhou S H, Liu J, et al. Preparation and properties of rare-earth doped polyurethane coating light conversion film[J]. *Polymeric Materials Science & Engineering*, 2003, 19(4): 173-176.

- [17] 苏静, 张恒塘, 杨勇. Nd:GSAG 纳米粉体的合成、晶体结构及光谱[J]. 中国稀土学报, 2012, 30(6): 738-743.
Su J, Zhang H Y, Yang Y. Synthesis, crystal structure and spectral properties of Nd:GSAG nano-powder[J]. Journal of the Chinese Society of Rare Earths, 2012, 30(6): 738-743.
- [18] Zhang Y, Su J, Yao Y J, et al. Synthesis, structure and optical properties of polycrystalline Cr, Nd:GSAG powders by a co-precipitation method[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2014, 617: 58-62.
- [19] Su J, Liu B, Xu L H, et al. Effective segregation during Czochralski growth and spectral properties of Nd³⁺ in GSAG crystal[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2012, 512(1): 230-234.
- [20] Su J, Miao J H, Xu L H, et al. Synthesis and characterization of nanocrystalline Nd³⁺-doped gadolinium scandium aluminum garnet powders by a gel-combustion method[J]. Materials Research Bulletin, 2012, 47(7): 1709-1712.
- [21] 王迪. Nd³⁺ 掺杂浓度对 LD 泵浦 Nd:YAG 脉冲激光器输出特性影响的研究[D]. 长春: 长春理工大学, 2011: 2-5.
Wang D. The effect of Nd³⁺ doping on the LD-pumped Nd:YAG pulsed laser output characteristics[D]. Changchun: Changchun University of Science and Technology, 2011: 2-5.
- [22] 陈薪羽, 王迪, 王超, 等. Nd³⁺ 掺杂浓度对无水冷 Nd:YAG 激光器输出特性的影响[J]. 红外与激光工程, 2011, 40(5): 817-821.
Chen X Y, Wang D, Wang C, et al. Effect of Nd³⁺ doping concentration on the output characteristics of Nd:YAG laser without water-cool[J]. Infrared and Laser Engineering, 2011, 40(5): 817-821.
- [23] 张红瑞, 高明义, 郑义, 等. 低掺杂浓度 Nd:YVO₄ 激光器的输出特性研究[J]. 激光与红外, 2003, 33(2): 115-117.
Zhang H R, Gao M Y, Zheng Y, et al. Performance of Nd:YVO₄ laser with lower Nd³⁺ doped concentration[J]. Laser & Infrared, 2003, 33(2): 115-117.
- [24] 李健, 何京良, 侯玮, 等. Nd³⁺ 掺杂浓度对大功率全固态 Nd:YVO₄ 激光器输出特性影响的研究[J]. 中国激光, 2000, 27(4): 298-302.
Li J, He J L, Hou W, et al. Influence of the Nd³⁺-doped concentration on the output performance of a high power all-solid-state Nd:YVO₄ laser[J]. Chinese Journal of Lasers, 2000, 27(4): 298-302.
- [25] Yamazaki S, Marumo F, Tanaka K, et al. A structural study of facet and off-facet parts of rare-earth garnets, Gd₃Sc₂Al₃O₁₂, Gd₃Sc₂Ga₃O₁₂, and La₃Lu₂Ga₃O₁₂[J]. Journal of Solid State Chemistry, 1994, 108(1): 94-98.
- [26] 许晋瑞. 新型激光晶体 Nd:GSAG 和 Cr, Nd:GSAG 的生长及光学性能研究[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2017: 20-22, 38.
Xu J R. Growth and optical properties of new laser crystals Nd:GSAG and Cr, Nd:GSAG[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2017: 20-22, 38.
- [27] 庄佳唯, 周希, 严以律, 等. 激光脉冲与电子对撞产生准单能 X 射线的数值模拟[J]. 激光杂志, 2021, 42(7): 23-27.
Zhuang J W, Zhou X, Yan Y L, et al. Numerical simulation of quasi-monoenergetic X-ray produced by laser pulse colliding with electrons[J]. Laser Journal, 2021, 42(7): 23-27.
- [28] Koechner W. Solid-state laser engineering[M]. New York: Springer, 2006.

Growth, Structure, Spectroscopy, and Laser Performance of Nd : GSAG Crystals

Huang Lei^{1,2,3}, Zhang Qingli^{2,3*}, Luo Jianqiao^{2,3}, Liu Wenpeng^{2,3}, Zhang Junrui^{1,2,3},
Dou Renqin^{2,3}, Sun Guihua^{2,3}, Quan Cong^{2,3}, Chen Yingying^{2,3,4}, Ding Shoujun^{2,3,5}, Liu Yao^{1,2,3},
Fan Ying^{2,3,6}

¹School of Environmental Science and Optoelectronic Technology, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, Anhui, China;

²Anhui Provincial Key Laboratory of Photonic Devices and Materials, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, Anhui, China;

³Advanced Laser Technology Laboratory of Anhui Province, Hefei 230037, Anhui, China;

⁴Science Island Branch, Graduate School, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, Anhui, China;

⁵School of Microelectronics and Data Science, Anhui University of Technology, Maanshan 243002, Anhui, China;

⁶Institutes of Physical Science and Information Technology, Anhui University, Hefei 230061, Anhui, China

Abstract

Objective Atmospheric water vapor has a significant impact on the greenhouse effect, water cycle, weather phenomena, atmospheric physical and chemical reactions, and air quality; therefore, the detection of atmospheric water vapor profiles is crucial. Differential absorption lidar (DIAL) is a high-precision, high-spatiotemporal-resolution atmospheric water vapor detection system with important application prospects for airborne and satellite platforms. The absorptivity values of light with wavelengths in the vicinity of 940 nm, 935 nm/936 nm, 942 nm/943 nm, and 944 nm are high in water vapor and are less affected by interference from other gases, making it suitable for lidar emission light sources. Nd:GSAG crystals exhibit excellent radiation resistance and are therefore suitable for use in space environments. It can directly generate the laser with wavelength of 942 nm pumped by laser diode (LD) and has advantages such as high efficiency and stability, long lifespan, light weight, and small volume. It is suitable for use on airborne and satellite platforms. Differential absorption lidar for water vapor detection requires high wavelength stability, linewidth, and spectral purity of the emitted laser. Therefore, further research on the spectral and laser performances of Nd:GSAG, as an excellent 942 nm laser working material, is warranted. In addition, reducing the doping concentration of Nd³⁺ in garnet laser crystals is expected to increase the fluorescence lifetime, reduce the thermal lensing effect, and improve the laser beam quality. Therefore,

optimizing the doping concentration of Nd:GSAG is expected to improve its 942 nm laser efficiency and beam quality.

Methods According to the stoichiometric ratio of $\text{Nd}_{0.045}\text{Gd}_{2.955}\text{Sc}_2\text{Al}_3\text{O}_{12}$, the raw materials Gd_2O_3 , Sc_2O_3 , Al_2O_3 , and Nd_2O_3 are weighed, evenly mixed, pressed into circular blocks, and calcined in a muffle furnace to obtain polycrystalline raw materials. Finally, a single-crystal furnace is used to grow crystals with a size of 50 mm × 70 mm, and the laser ablation (LA)-inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) is used to measure the crystal composition. Single-crystal rocking (XRC) and X-ray powder diffraction (XRD) tests are performed on the crystals using an X-ray diffractometer. The transmittance spectra are measured using an ultraviolet (UV)/visible/near-infrared spectrophotometer. The fluorescence lifetime and emission spectra are obtained using a steady-state/transient fluorescence spectrometer, wherein the fluorescence lifetime is excited by an optical parametric oscillator and the fluorescence emission spectrum is excited by an 808 nm fiber coupled laser. The pump source in the laser experiment is an 808 nm fiber-coupled laser, and the resonant cavity is a 10-mm long flat cavity. The dimensions of the laser gain medium are 2 mm × 2 mm × 6 mm.

Results and Discussions The crystal formula is $\text{Nd}_{0.025}\text{Gd}_{2.64}\text{Sc}_{1.79}\text{Al}_{3.28}\text{O}_{11.60}$, in which the Nd^{3+} doping atomic fraction is 0.94%. Further, the full width at half maximum (FWHM) of the XRC curve is 0.019° , and the XRD peak is consistent with that in the standard card ICSD78052. At the strongest absorption peak of 808.5 nm, the absorption coefficient is 3.79 cm^{-1} , the absorption cross section is $3.41 \times 10^{-20}\text{ cm}^2$, and the FWHM of the absorption peak is 3.23 nm, which is better than that (2.79 nm) of Nd:YAG crystal with doping atomic fraction of 0.6%. Moreover, 1060 nm is the strongest emission wavelength excited at 808 nm, with emission cross-sections of $5.62 \times 10^{-20}\text{ cm}^2$ and $2.33 \times 10^{-20}\text{ cm}^2$ at 1060 nm and 942 nm, respectively. The fluorescence lifetime is 275 μs , which is 22 μs longer than that of Nd : GSAG crystal with doping atomic fraction of 1.20%. The FWHM of the spectrum of the 942 nm laser is 0.53 nm, with a maximum output power of 0.54 W, a conversion efficiency of 5.6%, a slope efficiency of 9.1%, and a laser threshold of 3.35 W. At a laser power of 0.4 W, the beam quality factors M_x^2 and M_y^2 in the horizontal and vertical directions are 2.72 and 3.45, respectively. The waist diameter is small and the waist diameters d_x and d_y in the horizontal and vertical directions are 0.1048 mm and 0.1185 mm, respectively. All indicators are better than those of the 466 nm laser of Nd:YAG crystal with doping atomic fraction of 0.6%.

Conclusions The grown Nd:GSAG crystal with doping atomic fraction of 0.94% has good crystal quality. The Nd doping increases the cell parameters and crystal density. At 808.5 nm, the absorption coefficient of the Nd:GSAG crystal with doping atomic fraction of 0.94% is less than that of Nd:GSAG with doping atomic fraction of 1.20%, and the thermal lensing effect can be reduced by increasing the crystal length. The FWHM of the absorption peak is greater than that of Nd:YAG, which has a lower requirement for a pump source. The fluorescence lifetime and emission cross-section at 942 nm are better than those of high-concentration crystals; the grown crystal is therefore more conducive to 942 nm laser output and energy storage. The maximum laser output power, optical conversion efficiency, slope efficiency, laser threshold, and beam quality of the 942 nm laser are superior to those of the 946 nm laser of Nd:YAG crystal with doping atomic fraction of 0.6%. The 942 nm waist diameter and laser spectral FWHM are the smallest among those of the four wavelengths (i.e., 942 nm, 946 nm, 1060 nm, 1064 nm), indicating good monochromaticity. The results indicate that the Nd:GSAG crystals with low doping concentrations exhibit excellent laser performances at 942 nm.

Key words laser optics; solid state lasers; Nd:GSAG; spectrum