

# 基于确定偶极子取向的 $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$ 吸收截面的测量

王煜<sup>1</sup>, 吴伟冲<sup>1</sup>, 朱占达<sup>1,2,3,4</sup>, 惠勇凌<sup>1,2,3,4</sup>, 雷甬<sup>1,2,3,4\*\*</sup>, 李强<sup>1,2,3,4\*</sup>

<sup>1</sup>北京工业大学材料与制造学部激光工程研究院, 北京 100124;

<sup>2</sup>北京市激光应用技术工程技术研究中心, 北京 100124;

<sup>3</sup>激光先进制造北京市高等学校工程研究中心, 北京 100124;

<sup>4</sup>跨尺度激光成型制造技术教育部重点实验室, 北京 100124

**摘要** 确定具有各向异性、非线性吸收特性的调 Q 晶体内电偶极子的取向, 是测量其吸收截面的重要条件。通过对  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体所属的空间群以及掺杂  $\text{Co}^{2+}$  在晶胞结构中的位置对称性的分析, 确定了晶体内电偶极子的跃迁方向主要是沿晶胞的 4 个体对角线方向分布的, 建立了偏振入射光在  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体内传输的理论模型。实验测量了沿 [100] 方向切割的  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体在偏振入射光沿晶胞面对角线方向时的非线性透过率曲线, 利用建立的模型对实验结果进行拟合, 得到  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体在 1.5  $\mu\text{m}$  波段的基态吸收截面和激发态吸收截面分别为  $(3.6 \pm 0.3) \times 10^{-19} \text{ cm}^2$  和  $(4.5 \pm 0.4) \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ 。

**关键词** 激光光学; 被动调 Q;  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$ ; 各向异性; 可饱和吸收; 吸收截面

中图分类号 TN248.1

文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS202242.1014001

## Measurement of $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$ Absorption Cross-Sections by Determining Dipole Orientation

Wang Yu<sup>1</sup>, Wu Weichong<sup>1</sup>, Zhu Zhanda<sup>1,2,3,4</sup>, Hui Yongling<sup>1,2,3,4</sup>,  
Lei Hong<sup>1,2,3,4\*\*</sup>, Li Qiang<sup>1,2,3,4\*</sup>

<sup>1</sup>*Institute of Laser Engineering, Faculty of Materials and Manufacturing, Beijing University of Technology, Beijing 100124, China;*

<sup>2</sup>*Beijing Engineering Research Center of Laser Applied Technology, Beijing 100124, China;*

<sup>3</sup>*Beijing Colleges and Universities Engineering Research Center of Advanced Laser Manufacturing, Beijing 100124, China;*

<sup>4</sup>*Key Laboratory of Trans-Scale Laser Manufacturing Technology, Ministry of Education, Beijing 100124, China*

**Abstract** Determining the orientation of electric dipoles in Q-switched crystals with anisotropic and nonlinear absorption properties is an important condition for measuring their absorption cross sections. Through the analysis of the space group to which the  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  crystal belongs and the position symmetry of the doped  $\text{Co}^{2+}$  in the cell structure, it is determined that the transition direction of the electric dipole in the crystal is mainly distributed along the diagonal direction of four individuals in the cell, and the theoretical model of polarized incident light propagation in the  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  crystal is established. The nonlinear transmittance curve of  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  crystal cut along [100] direction is measured experimentally in the direction of polarized incident light. The experimental results are fitted by the established model. The ground state absorption cross section and excited state

收稿日期: 2021-10-18; 修回日期: 2021-11-14; 录用日期: 2021-12-06

基金项目: 国家自然科学基金(62075003)、北京市自然科学基金(4202007, KZ202110005010)

通信作者: \*ncltlq@bjut.edu.cn; \*\*leihong@bjut.edu.cn

absorption cross section of  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  crystal in  $1.5 \mu\text{m}$  wave band are  $(3.6 \pm 0.3) \times 10^{-19} \text{ cm}^2$  and  $(4.5 \pm 0.4) \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ , respectively.

**Key words** laser optics; passive Q-switching;  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$ ; anisotropy; saturable absorption; absorption cross-section

## 1 引言

$\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体具有稳定的物化性能,还具有热导率高、硬度大、吸收截面大、饱和光强小和抗损伤等优点,是目前  $1.5 \mu\text{m}$  波段,即人眼安全波段普遍采用的被动调 Q 晶体<sup>[1-3]</sup>。在人眼安全激光器的驱动下,二极管泵浦的  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  被动调 Q 激光器得到了快速的发展,而且在远程测量、环境监测、无人驾驶、激光雷达和激光成像等众多领域中有着广泛的应用<sup>[4-5]</sup>。

在  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  被动调 Q 晶体的众多参量中,吸收截面对被动调 Q 激光器的理论分析以及最优化设计具有重要的作用<sup>[6-7]</sup>。2000 年, Yumashev 等<sup>[8]</sup>将  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体作为各向同性晶体,他们测量了其在  $1.54 \mu\text{m}$  波段下基态和激发态的吸收截面。2007 年, Volk 等<sup>[9]</sup>报道了  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体的各向异性和可饱和吸收特性,采用偶极子沿三个晶轴分布的模型对晶体的基态吸收截面和激发态吸收截面进行了评估。2020 年,方子君等<sup>[10]</sup>分别测量了沿  $[100]$  和  $[110]$  方向切割的  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体对不同偏振方向入射光的透过率,实验测量结果与同属立方晶系的  $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$  晶体有较大的差异,这表明立方晶系的  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体具有不同的饱和和吸收特性,其内部电偶极子不是沿三个晶轴方向分布的,所以不能用偶极子沿三个晶轴方向分布的模型对  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体的吸收截面进行计算。然而,目前关于  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体内偶极子取向的研究,以及在确定偶极子取向的情况下对晶体吸收截面的测量尚未有更多的报道。

本文通过对  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体所属的空间群以及掺杂离子  $\text{Co}^{2+}$  在晶胞结构中的位置对称性的分析,确定了晶体内  $\text{Co}^{2+}$  偶极子的取向,建立了偏振入射光在  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体内传输的理论模型。本文测量了沿  $[100]$  方向切割的  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体在探测光的特定偏振方向的透过率关于能量密度的曲线,并采用所建立的模型对测量结果进行拟合,通过拟合计算得到了  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体的基态吸收截面和激发态吸收截面。

## 2 偶极子取向分析与理论模型

$\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体的各向异性和可饱和吸收特性与晶体结构相关<sup>[11]</sup>。对于立方晶系的可饱和吸收体<sup>[12]</sup>,由于晶体结构的对称性,所以其电偶极子是沿着该晶体的  $m$  ( $m = 4, 3, 2$ ) 次轴分布的。 $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  属于立方晶系  $\text{Fd}3\text{m}$  空间群<sup>[13]</sup>,在该晶体的单位晶胞中, $\text{O}^{2-}$  按立方紧密堆积 (CCP) 排列,排列后形成 96 个空隙,但只有 24 个空隙被原子填充,其中 8 个  $\text{Mg}^{2+}$  占据四面体空隙,16 个  $\text{Al}^{3+}$  占据八面体空隙。掺入的  $\text{Co}^{2+}$  易于取代占据四面体空隙的  $\text{Mg}^{2+}$ <sup>[14]</sup>,而占据四面体空隙的  $\text{Mg}^{2+}$  位于晶体内 8a Wyckoff (WP 8a) 位置,满足  $\bar{4}3$  对称<sup>[13]</sup>,即具有 3 条分别平行于晶轴方向的 4 次反演对称轴 ( $S_4$  轴) 和 4 条分别平行于  $[111]$ 、 $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ 、 $[\bar{1}1\bar{1}]$  和  $[\bar{1}\bar{1}1]$  方向的 3 次旋转对称轴 ( $C_3$  轴),如图 1(a) 所示。 $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体的单位晶胞在  $S_4$  轴和  $C_3$  轴上的投影如图 1(b) 所示。由文献<sup>[13]</sup>可知, WP 8a 位置与最近邻 4 个  $\text{O}^{2-}$  之间的距离 ( $0.216506a$ ,  $a$  为晶格常数) 远小于与其他离子之间的距离 ( $0.414578a$  和  $0.433013a$ ),所以认为  $\text{Co}^{2+}$  更易于与最近邻 4 个  $\text{O}^{2-}$  形成电偶极子,即  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体内的电偶极子是沿着晶胞的 4 条体对角线方向跃迁的,且每个方向上的跃迁偶极矩大小相等,如图 2 所示。在该条件下,对于沿  $[100]$  方向切割的  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体,偶极子在垂直于  $[100]$  平面分别沿  $[011]$  和  $[0\bar{1}1]$  方向投影,当入射光的偏振方向沿着这两个方向时透过率达到最大,当入射光的偏振方向沿  $[010]$  或  $[001]$  方向时透过率达到最小,上述结果与文献<sup>[10]</sup>的实验测量结果一致,这进一步验证了上述提出的假设。

在确定  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体内偶极子的取向后,根据  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体的特性建立偏振入射探测光在晶体内传输的理论模型,进而得到  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体的透过率关于入射脉冲能量的理论关系式。 $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体亚稳态能级的恢复时间约为  $350 \text{ ns}$ <sup>[8]</sup>,而入射探测光的脉宽为纳秒量级,所以  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体属于慢弛豫可饱和吸收体。激发态的弛豫时间非常短,只有皮秒量级<sup>[15]</sup>,

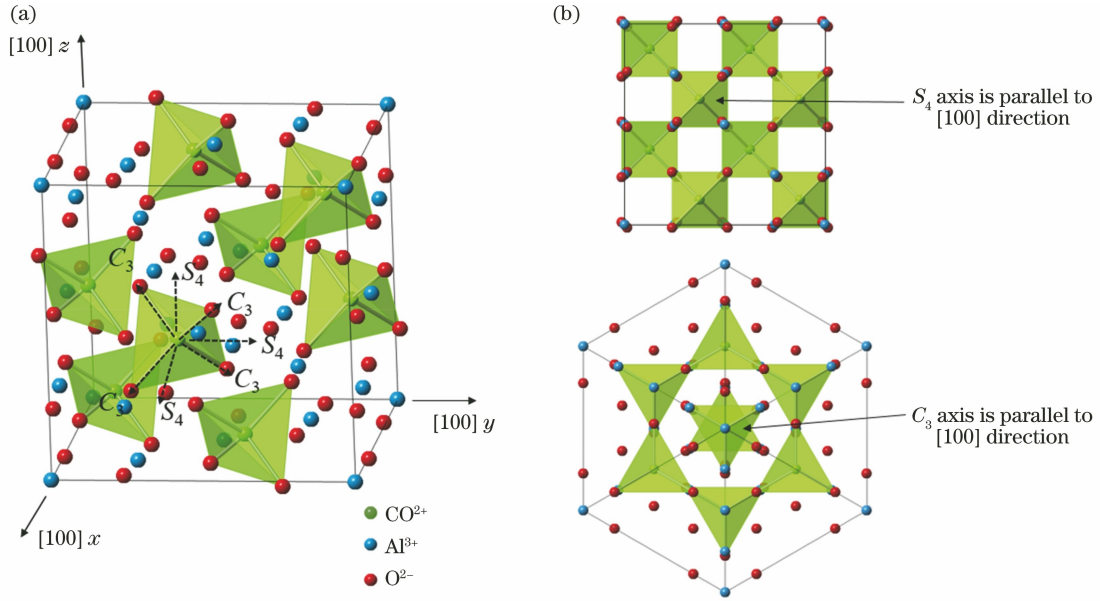


图 1  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶胞的晶体结构。(a) 8 个满足  $C_3$  对称和  $S_4$  对称的  $\text{Co}^{2+}$  离子(四面体中的圆球);

(b) 满足  $C_3$  对称和  $S_4$  对称的  $\text{Co}^{2+}$  离子分别在  $[100]$  和  $[111]$  方向上的投影

Fig. 1 Crystal structures of  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  cell. (a) 8  $\text{Co}^{2+}$ -ions with site symmetry of  $C_3$  and  $S_4$  (spheres in tetrahedrons); (b) projection of  $\text{Co}^{2+}$ -ions satisfying  $C_3$  symmetry and  $S_4$  symmetry in  $[100]$  and  $[111]$  directions, respectively

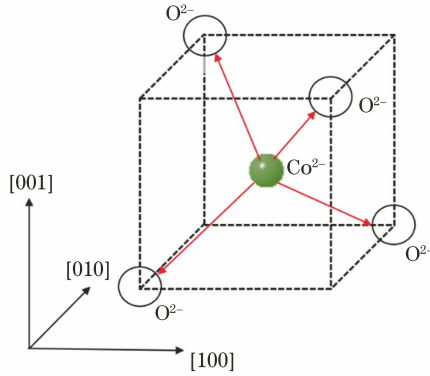


图 2  $\text{Co}^{2+}$  偶极子沿 4 条平行于  $[111]$ 、 $[1\bar{1}\bar{1}]$ 、 $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$  和  $[\bar{1}\bar{1}1]$  方向的  $C_3$  轴的跃迁示意图

Fig. 2 Schematic of transition of  $\text{Co}^{2+}$  dipole along the  $C_3$  axis parallel to  $[111]$ ,  $[1\bar{1}\bar{1}]$ ,  $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]$ , and  $[\bar{1}\bar{1}1]$  directions

远小于亚稳态的恢复时间,因此考虑基态粒子数和亚稳态粒子数,同时也考虑了晶体的激发态吸收(ESA)。入射光强  $I$  沿方向  $r$  通过厚度为  $l$  的  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体后,满足的速率方程<sup>[12,16]</sup>为

$$\frac{1}{v} \frac{\partial I}{\partial t} + \frac{\partial I}{\partial r} = - \sum_{i=1}^4 [\sigma_{\text{gsa}} f_i(\alpha) N_{0,i} + \sigma_{\text{esa}} f_i(\alpha) N_{1,i}] I, \quad (1)$$

$$\frac{\partial N_{0,i}}{\partial t} = - \frac{N_{0,i} I \sigma_{\text{gsa}} f_i(\alpha)}{h\nu} + \frac{N_{1,i}}{\tau_1}, \quad (2)$$

$$N_{0,i} + N_{1,i} = N_i, i = 1, 2, 3, 4, \quad (3)$$

式中: $v$  为光速; $t$  为时间; $\sigma_{\text{gsa}}$  和  $\sigma_{\text{esa}}$  分别为电偶极子从基态和激发态跃迁的吸收截面大小; $N_{0,i}$  和  $N_{1,i}$  分别为  $i$  类型电偶极子在基态和亚稳态的粒子数密度; $N_i$  为  $i$  类型电偶极子的总粒子数密度; $f_i(\alpha) = (\mathbf{a}_i \cdot \mathbf{e})^2$  为  $i$  类型电偶极子在与夹角为  $\alpha$  的偏振探测光相互作用时,沿偶极子方向对基态跃迁的影响因子,其中  $\mathbf{a}_i$  和  $\mathbf{e}$  分别为  $i$  类型电偶极子跃迁方向和入射光电场方向的单位向量; $\tau_1$  为亚稳态能级寿命; $h\nu$  为光子能量。

将式(3)代入式(1),可得

$$\frac{1}{v} \frac{\partial I}{\partial t} + \frac{\partial I}{\partial r} = - \sum_{i=1}^4 [(\sigma_{\text{gsa}} - \sigma_{\text{esa}}) f_i(\alpha) N_{0,i} + \sigma_{\text{esa}} f_i(\alpha) N_i] I. \quad (4)$$

对于慢弛豫可饱和吸收体,亚稳态自发弛豫过程缓慢,式(2)可近似为

$$\frac{\partial N_{0,i}}{\partial t} = - \frac{N_{0,i} I \sigma_{\text{gsa}} f_i(\alpha)}{h\nu}. \quad (5)$$

将式(5)代入式(4),可得

$$\frac{1}{v} \frac{\partial I}{\partial t} + \frac{\partial I}{\partial r} = \sum_{i=1}^4 \left[ \frac{h\nu (\sigma_{\text{gsa}} - \sigma_{\text{esa}})}{\sigma_{\text{gsa}}} \frac{\partial N_{0,i}}{\partial t} - \sigma_{\text{esa}} f_i(\alpha) N_i I \right]. \quad (6)$$

当入射脉冲宽度  $\Delta t$  远小于亚稳态能级寿命  $\tau_1$

并假定  $t=0$  时,入射脉冲光与可饱和吸收体作用结束,则入射光能量  $U$  为

$$U = \int_{-\Delta t}^0 I(r, t) dt, \quad (7)$$

$$\frac{1}{v} \int_{-\Delta t}^0 \frac{\partial I}{\partial t} dt = \frac{1}{v} [I(0) - I(-\Delta t)] \approx 0. \quad (8)$$

将式(7)和式(8)代入式(6),从  $t = -\Delta t$  到  $t = 0$  积分可得

$$\frac{dU}{dr} = \sum_{i=1}^4 \left\{ \frac{h\nu(\sigma_{gsa} - \sigma_{esa})}{\sigma_{gsa}} [N_{0,i}(0) - N_i] - \sigma_{esa} f_i(\alpha) N_i U \right\}. \quad (9)$$

由式(5)可得

$$N_{0,i}(r, 0) = N_i \exp \left[ -\frac{U(r) \sigma_{gsa} f_i(\alpha)}{h\nu} \right]. \quad (10)$$

将式(10)代入式(9),可得

$$\frac{dU}{dr} = \sum_{i=1}^4 N_i \left\{ \frac{h\nu(\sigma_{gsa} - \sigma_{esa})}{\sigma_{gsa}} \left\{ \exp \left[ -\frac{U(r) \sigma_{gsa} f_i(\alpha)}{h\nu} \right] - 1 \right\} - \sigma_{esa} f_i(\alpha) U(r) \right\}. \quad (11)$$

当入射光能量  $U$  足够小时,可得

$$\exp \left[ -\frac{U(r) \sigma_{gsa} f_i(\alpha)}{h\nu} \right] \approx 1 - \frac{U(r) \sigma_{gsa} f_i(\alpha)}{h\nu}. \quad (12)$$

将式(12)代入式(11),积分得到小信号透过率  $T_0$  为

$$T_0 = \exp \left[ -\sum_{i=1}^4 N_i \sigma_{gsa} f_i(\alpha) l \right], \quad (13)$$

式中:  $l$  为晶体厚度。

建立图 1(a) 的空间直角坐标系。Co<sup>2+</sup>: MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 晶体内电偶极子主要是沿晶胞的 4 条体

对角线方向跃迁的,则晶体内沿电偶极子方向的单

位向量分别为  $\mathbf{a}_1 = \frac{\sqrt{3}}{3}(1, 1, 1)$ 、 $\mathbf{a}_2 = \frac{\sqrt{3}}{3}(1, -1, -1)$ 、 $\mathbf{a}_3 = \frac{\sqrt{3}}{3}(-1, 1, -1)$  和  $\mathbf{a}_4 = \frac{\sqrt{3}}{3}(-1, -1, 1)$ ,

将它们代入式(13)可得小信号透过率  $T_0$  为

$$T_0 = \exp \left( -\frac{4\sigma_{gsa} N_i l}{3} \right). \quad (14)$$

将式(14)代入式(11),可以得到 Co<sup>2+</sup>: MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 晶体内  $U(r)$  关于传输距离  $r$  的理论表达式,即

$$\frac{dU}{dr} = \sum_{i=1}^4 \frac{-3 \ln T_0}{4\sigma_{gsa} l} \left\{ h\nu \left( 1 - \frac{\sigma_{esa}}{\sigma_{gsa}} \right) \left\{ \exp \left[ -\frac{U \sigma_{gsa} f_i(\alpha)}{h\nu} \right] - 1 \right\} - \sigma_{esa} f_i(\alpha) U \right\}. \quad (15)$$

### 3 实验研究

#### 3.1 实验装置

实验采用波长为 1.5 μm 的被动调 Q 脉冲激光器作为探测光源,脉冲能量为 200 μJ,脉冲宽度为 4.5 ns,重复频率为 1 Hz。将探测光源出射的脉冲激光经过偏振分光棱镜(PBS)后得到线偏振光,通过旋

转半波片(HWP)的角度可以调节线偏振光入射到晶体表面上的能量大小。利用两路探测方法可以克服激光器自身能量跳动对测量的影响。实验采用沿 [100] 方向切割的 Co<sup>2+</sup>: MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 晶体(正尖晶石结构),厚度为 1.90 mm,初始透过率  $T_0$  为 0.86。将 Co<sup>2+</sup>: MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 晶体固定在转台上并使探测光束沿晶体的 [100] 方向传播,实验装置如图 3 所示。通过

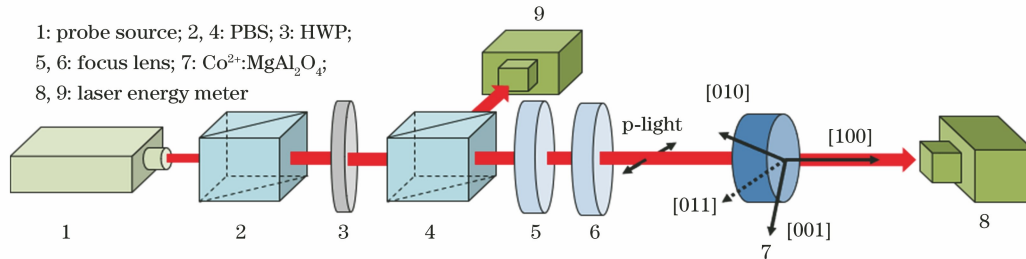


图 3 测量透过率的实验装置

Fig. 3 Experimental setup for measuring transmittance

焦距分别为 200 mm 和 100 mm 的组合透镜将探测光会聚到  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体上,其聚焦半径约为  $28\ \mu\text{m}$ ,泵浦光的最高能量密度约为  $8\ \text{J}/\text{cm}^2$ 。通过测量透过  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体前后探测光脉冲能量的大小,可以精确测量晶体在不同能量密度下的透过率。

### 3.2 实验结果与讨论

如图 3 所示,通过旋转沿  $[100]$  方向切割的  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体,使晶体的面对角线方向 ( $[011]$  轴) 与探测光的偏振方向 ( $p$  偏振方向) 平行,这种晶体的取向可以使探测光最大程度地激发晶

体。通过旋转半波片以改变偏振光入射到晶体表面上的能量密度,晶体的透过率随能量密度的变化如图 4 中空心圆所示。从图 4 可以看到,晶体的透过率随着入射能量密度的提高逐渐趋于饱和,在能量密度约为  $8\ \text{J}/\text{cm}^2$  时,透过率约为 97%,此时达到了饱和状态。为了获得基态吸收截面和激发态吸收截面,需要利用推导的模型对测量结果进行拟合。当探测光的偏振方向沿晶胞的面对角线方向 ( $[011]$  轴) 时,将沿探测光偏振方向的单位矢量  $\mathbf{e} = \left(0, \frac{\sqrt{2}}{2}, \frac{\sqrt{2}}{2}\right)$  代入式(15)可得

$$\frac{dU}{dr} = \frac{-3\ln T_0}{4l\sigma_{\text{gsa}}} \left\{ h\nu \left(1 - \frac{\sigma_{\text{esa}}}{\sigma_{\text{gsa}}}\right) \left[ \exp\left(-\frac{2U\sigma_{\text{gsa}}}{3h\nu}\right) - 2 \right] - \frac{4U\sigma_{\text{esa}}}{3} \right\}. \quad (16)$$

式(16)是包含基态吸收截面  $\sigma_{\text{gsa}}$  和激发态吸收截面  $\sigma_{\text{esa}}$  两个未知参数的非线性偏微分方程。 $U$  表示晶体内沿光传输方向且距晶体表面  $r$  处的探测光能量,则入射到晶体表面上的能量为  $U(0)$ ,此时晶体的透过率  $T=U(l)/U(0)$ ,其中  $U(l)$  为探测光穿过厚度  $l=1.90\ \text{mm}$  晶体后的能量,晶体的小信号透过率  $T_0=0.86$ ,1535 nm 波段的光子能量  $h\nu=1.295\times 10^{-19}\ \text{J}$ 。利用实验测量数据对上述非线性偏微分方程中的参数进行拟合,步骤如下:

1) 由于实验测量得到的数据为入射光能量与透过率的关系,所以需要计算在入射光能量为  $U_i(0)$  时晶体的预测透过率  $T_{\text{cal}}$ 。若晶体的预测透过率  $T_{\text{cal}}=U_i(l)/U_i(0)$ ,则需计算在入射光能量为  $U_i(0)$  时探测光穿过晶体后的预测光能量  $U_i(l)$ ,而  $U_i(l)$  的计算可通过式(16)求得,即设基态吸收截面和激发态吸收截面为某一给定数值,当入射光能量为  $U_i(0)$  时,由式(16)可计算出探测光穿过晶体后的预测光能量  $U_i(l)$ ,进而得到预测透过率  $T_{\text{cal}}$ 。

2) 在满足设定的条件下,构造晶体的预测透过率  $T_{\text{cal}}$  与实验透过率  $T_{\text{exp}}$  的数据误差目标函数,即

$$\min F(\sigma_{\text{gsa}}, \sigma_{\text{esa}}) = \sum_{i=1}^n (T_{\text{exp}} - T_{\text{cal}})^2, n \text{ 为数据点数。}$$

3) 采用最小二乘法求出在数据误差目标函数为最小值时对应的基态吸收截面和激发态吸收截面。

根据步骤 1)~3),当基态吸收截面和激发态吸收截面分别为  $\sigma_{\text{gsa}} = (3.6 \pm 0.3) \times 10^{-19}\ \text{cm}^2$  和  $\sigma_{\text{esa}} = (4.5 \pm 0.4) \times 10^{-20}\ \text{cm}^2$  时,数据误差目标函数  $F(\sigma_{\text{gsa}}, \sigma_{\text{esa}}) \leq 0.02$ ,此时决定系数  $R^2 > 0.8$ ,接近于 1,这说明拟合数据和实验数据的相关度较高,

所以此计算结果即为  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体沿偶极子方向的基态吸收截面和激发态吸收截面。当基态吸收截面和激发态吸收截面分别为  $\sigma_{\text{gsa}} = 3.6 \times 10^{-19}\ \text{cm}^2$  和  $\sigma_{\text{esa}} = 4.5 \times 10^{-20}\ \text{cm}^2$  时,将它们代入式(16)得到的拟合曲线如图 4 中实线所示。从图 4 中实线可以看出,理论曲线与实验测量曲线具有较好的一致性, $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体的基态吸收截面  $\sigma_{\text{gsa}}$  比文献[9]有所减小,这个差异可能是由文献[9]的模型中偶极子方向分布与本文不同造成的。在所设计的模型中,当探测光沿晶轴方向传输时,4 个体对角线方向上的电偶极子都会参与吸收,而文献[9]简单地认为偶极子是沿 3 个晶轴方向传输的,当探测光沿晶轴方向传输时,另外两个方向的偶极子不参与吸收,因此测得的吸收截面变大。 $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体内电偶极子的取向对其吸收截

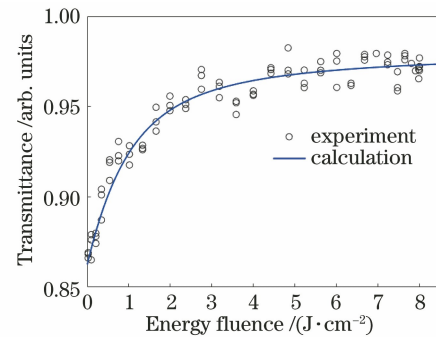


图 4 沿  $[100]$  方向切割的  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体的透过率与入射能量密度的关系

Fig. 4 Relationship between transmittance and incident energy fluence of  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  crystals cut along  $[100]$  direction

面的测量具有很大的影响,在确定  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体内电偶极子的取向,才能对  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体的吸收截面进行正确测量。

## 4 结 论

本文通过对  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体所属的空间群以及掺杂  $\text{Co}^{2+}$  在晶胞结构中的位置对称性的分析,确定了晶体中  $\text{Co}^{2+}$  偶极子主要是沿晶体晶胞的 4 个体对角线方向 ( $[111]$ 、 $[1\bar{1}\bar{1}]$ 、 $[\bar{1}1\bar{1}]$  和  $[\bar{1}\bar{1}1]$  轴)分布的。相比文献[9]中偶极子沿三个晶轴方向分布的假设,本文对吸收截面的测量结果更加准确。通过实验测量和理论拟合得到,  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体在  $1.5\ \mu\text{m}$  波段的基态吸收截面和激发态吸收截面分别为  $\sigma_{\text{gsa}} = (3.6 \pm 0.3) \times 10^{-19}\ \text{cm}^2$  和  $\sigma_{\text{esa}} = (4.5 \pm 0.4) \times 10^{-20}\ \text{cm}^2$ 。晶体内偶极子方向的确定以及吸收截面的准确测量,有助于  $\text{Co}^{2+}:\text{MgAl}_2\text{O}_4$  晶体被动调 Q 激光器的理论分析和最优设计。

## 参 考 文 献

- [1] Zha S Q, Chen Y J, Li B X, et al. High-repetition-rate  $1.5\ \mu\text{m}$  passively Q-switched Er:Yb:YAl<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> microchip laser [J]. Chinese Optics Letters, 2021, 19(7): 071402.
- [2] 宋庆坤, 李海兵, 董永军, 等. 热透镜效应对 Er<sup>3+</sup>, Yb<sup>3+</sup>:glass 激光器输出能量的影响 [J]. 中国激光, 2021, 48(17): 1701002.  
Song Q K, Li H B, Dong Y J, et al. Influence of thermal lens effect on output energy of Er<sup>3+</sup>, Yb<sup>3+</sup>:glass laser [J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(17): 1701002.
- [3] Gorbachenya K N, Kisel V E, Yasukevich A S, et al. Eye-safe  $1.55\ \mu\text{m}$  passively Q-switched Er, Yb:GdAl<sub>3</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>4</sub> diode-pumped laser [J]. Optics Letters, 2016, 41(5): 918-921.
- [4] Vitiello M, Pizzarulli A, Ruffini A. A compact high power Er:Yb:glass eyesafe laser for infrared remote sensing applications [J]. Proceedings of SPIE, 2010, 7836: 78360C.
- [5] Mak A A, Polyakov V M, Vitkin V V, et al. 1 mJ single-rod fiber Er:glass laser for range finding [J]. Proceedings of SPIE, 2015, 9342: 93421K.
- [6] Chinn S R, King V. Subnanosecond (Er, Yb) glass Q-switched microlasers: 3-D transient modeling and experiments [J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 2006, 42(11): 1128-1136.
- [7] Belghachem N, Mlynczak J. Comparison of laser generation in thermally bonded and unbonded Er<sup>3+</sup>, Yb<sup>3+</sup>:glass/Co<sup>2+</sup>:MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> microchip lasers [J]. Optical Materials, 2015, 46: 561-564.
- [8] Yumashev K V, Denisov I A, Posnov N N, et al. Nonlinear absorption properties of Co<sup>2+</sup>:MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> crystal [J]. Applied Physics B, 2000, 70(2): 179-184.
- [9] Volk Y V, Malyarevich A M, Yumashev K V, et al. Anisotropy of nonlinear absorption in Co<sup>2+</sup>:MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> crystal [J]. Applied Physics B, 2007, 88(3): 443-447.
- [10] 方子君, 惠勇凌, 李国泰, 等. 不同取向 Co<sup>2+</sup>:MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 的可饱和吸收特性的研究 [J]. 光学学报, 2020, 40(22): 2214001.  
Fang Z J, Hui Y L, Li G T, et al. Study on the saturable absorption characteristics of Co<sup>2+</sup>:MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> with different orientations [J]. Acta Optica Sinica, 2020, 40(22): 2214001.
- [11] Okhrimchuk A G, Shestakov A V. Absorption saturation mechanism for YAG:Cr<sup>4+</sup> crystals [J]. Physical Review B, 2000, 61(2): 988.
- [12] I'ichev N N, Kir'yanov A V, Pashinin P P, et al. Investigation of nonlinear-absorption anisotropy in YAG:Cr<sup>4+</sup> [J]. Journal of Experimental and Theoretical Physics, 1994, 78(5): 768-776.
- [13] Sickafus K E, Wills J M, Grimes N W. Structure of spinel [J]. Journal of the American Ceramic Society, 1999, 82(12): 3279-3292.
- [14] Kuleshov N V, Mikhailov V P, Scherbitsky V G, et al. Absorption and luminescence of tetrahedral Co<sup>2+</sup> ion in MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> [J]. Journal of Luminescence, 1993, 55(5/6): 265-269.
- [15] Yumashev K V, Denisov I A, Posnov N N, et al. Excited state absorption and passive Q-switch performance of Co<sup>2+</sup> doped oxide crystals [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2002, 341(1/2): 366-370.
- [16] Kuo Y K, Huang M F, Birnbaum M. Tunable Cr<sup>4+</sup>:YSO Q-switched Cr:LiCAF laser [J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1995, 31(4): 657-663.