

Nd:LuAG 晶体的结构、光谱特性及激光性能表征*

王涛^{1, 2, 3}, 张琦², 张庆礼^{2, 3}, 孙贵华^{2, 3†}, 杨明亮^{3†}, 窦仁勤³, 王小飞³,

钱文丽^{3, 4}, 彭张良^{1, 3}, 张传成^{3, 4}

1. 安徽大学, 安徽 合肥 230601

2. 安徽火天晶体科技有限公司, 安徽 铜陵 244000

3. 国科学院合肥物质科学研究院安徽光学精密机械研究所光子器件与材料

安徽省重点实验室, 安徽 合肥 230031

4. 中国科学技术大学, 安徽 合肥 230026

摘要: LuAG 晶体因 Lu^{3+} 与常见的激活离子(Nd^{3+} 、 Yb^{3+} 和 Er^{3+})质量接近, 掺杂与未掺杂热导率接近($9.6 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$)等优势, 成为了一种极具潜力的高功率激光增益介质。本研究采用 Cz 法成功生长了 Nd:LuAG 晶体, ICP 测试结果显示 Nd^{3+} 的掺杂浓度为 0.85 at.%. 通过 XRD、Rietveld 精修和 XRC 对其晶体结构和质量进行研究。此外, 还利用透过光谱、吸收光谱、荧光光谱和荧光寿命等方法确定了 Nd:LuAG 晶体的光谱特性, 并基于 J-O 理论计算了其光谱参数(包括 J-O 强度、线强、自发跃迁概率、荧光分支比和辐射寿命)。首次利用 COMSOL 软件对 Nd:LuAG 晶体进行了温度分布与热应力分布模拟, 为激光实验中防止晶体开裂和减少热透镜的研究提供理论基础。激光实验展示了在透射率 $T = 40\%$ 的耦合输出镜条件下, 该晶体可实现 8.100 W 的最大输出功率, 斜效率达到 40.03%, 这是目前 Nd:LuAG 晶体所能实现的最高输出功率。高功率激光输出结果表明, Nd:LuAG 晶体是一种具有潜力的激光增益介质。

关键词: Nd:LuAG 晶体; 激光; 热模拟; J-O 理论

PACS: 42.70.H, 78.20.Ci, 78.55.-m

基金项目: 晶体材料全国重点实验室开放课题 (KF2603), 国家重点研发计划 (2023YFB3507401, 23YFB3507403), 国家自然科学基金 (52272011), 中国科学院青年创新促进会 (2023463)

† 通信作者.E-mail: ghsun@aiofm.ac.cn

† 通信作者.E-mail: yangmingliang@mail.ustc.edu.cn

第一作者.E-mail: q24201116@stu.ahu.edu.cn

1. 引言

高功率固态激光器由于其高效的能量转换、低热负荷和易于集成等优势, 在激光加工、生物医药、国防科技、信息通信及科学研究等多个领域得到广泛应用^[1-6]。其中, Nd^{3+} 掺杂晶体材料作为 $1\mu\text{m}$ 固态激光器中最常用的增益介质之一, 展现出稳定的四能级系统结构, 其激光上能级 $^4\text{F}_{3/2}$ 与下能级 $^4\text{I}_{11/2}$ 之间存在较大的能级间隔, 有效避免了热布居效应, 从而表现出较低的激光阈值和较高的转换效率^[7-10]。此外, Nd^{3+} 在 400-900 nm 光谱范围内的丰富而密集的吸收特征, 特别是 808 nm 附近的强吸收带 ($^4\text{I}_{9/2} \rightarrow ^4\text{F}_{5/2} + ^2\text{H}_{9/2}$), 与商用 GaAs-LD 的发射波长相匹配, 使其成为目前最主流且成熟的光学泵浦方案^[11-13]。但当 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 晶体掺杂多种常见的激活离子 (Nd^{3+} 、 Yb^{3+} 和 Er^{3+}) 时出现热导率显著下降的现象, 而 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 晶体因 Lu^{3+} 与常见的激活离子质量接近, 掺杂与未掺杂热导率接近 ($9.6 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$), 并未出现 YAG 晶体热导率显著下降的现象^[14,15]。且 Nd:LuAG 晶体有优良的机械和光学性能, 较宽的激光增益带宽以及较高的饱和通量 ($0.9 \text{ J}/\text{cm}^2$) 等特性, 受到广泛关注^[16-21]。

早在 2004 年, Kuwano^[17] 等人就对 LuAG 晶体熔点、折射率等性质进行了研究报道。2009 年, Xu 等人^[18]就成功研制了一种波长为 1064 nm 的 Nd:LuAG 晶体激光器,

其最大输出功率达到了 3.8 W，斜效率为 25.7%。随后，2010 年时，王晓丹^[22]对 Nd:LuAG 晶体进行了光谱性能测试和 J-O 理论计算，2011 年 Di^[23]等人对 Nd:LuAG 晶体进行了被动调 Q 激光实验，获得了最短脉宽为 12 ns、最高峰值功率为 4.21 kW 的结果。2012 年，Xu 等人^[21]又使用 SESAM 可饱和吸收镜对 Nd:LuAG 晶体进行了被动锁模实验，最大功率达到 1.05 W，脉冲宽度仅为 5.4 ps。同一年，Wagner 等人^[24]报道了 Nd:LuAG 陶瓷结构、折射率等相关工作。到了 2015 年，Ye 等人^[25]首次报道了 Nd:LuAG 陶瓷激光器在波长为 1064 nm 时实现的最大输出功率为 8.3 W，斜效率为 40.7% 的成果。2017 年，Ma 等人^[26]对 YAG/Nd:LuAG/YAG 进行键合，实现了 1.31 W 的最大输出功率，2025 年时，Chu 等人^[27]进一步提升了 Nd:LuAG 陶瓷激光器的性能，实现波长分别为 1053、1061、1064、1068、1072 和 1078 nm 六个波长的激光输出，其中在 1064 nm 的最大输出功率提高至 8.4 W，斜效率提升至 43.6%。2025 年，Wang^[30]等人用 LHPG 法生长出 Nd:LuAG 晶体，对 Nd:LuAG 晶体 XRD、光谱性能和 J-O 理论计算进行报道并对 XRD 测试结果进行精修。

从上述研究结果来看，Nd:LuAG 陶瓷激光器已经显示出优异的激光性能，Nd:LuAG 晶体激光器有较大的提升空间，特别是在连续波激光输出方面。因此，本研究采用了 Czochralski 方法生长 Nd:LuAG 晶体，并通过 XRD 和 FullProf 精修对晶体结构进行了深入研究，采用 X 射线摇摆曲线（XRC）对晶体质量进行表征。同时测试了其光谱性能（包括透过光谱、吸收光谱、发射光谱和荧光寿命）。利用 COMSOL 软件对 Nd:LuAG 晶体进行温度分布模拟和热应力模拟。对 Nd:LuAG 晶体激光器在 1064 nm 波长的激光输出进行报道。

2. 实验细节

2.1. 晶体生长

Nd:LuAG 单晶采用提拉法(Czochralski method)生长。选用上海阿拉丁试剂有限公司 5N 纯度的 Nd_2O_3 、 Lu_2O_3 和 Al_2O_3 进行配量。称量后的原料经充分研磨混合后压制成药饼状，在 1300°C 下预烧 24h 以提高原料成分均匀化。随后将预烧料置于直径 60 mm 的铱坩锅中进行晶体生长。采用 LuAG 晶体作为籽晶，生长过程中，拉晶速率控制在 0.6–3 mm/h，晶体旋转速率为 3–8 r/min，生长气氛为高纯氮气。晶体生长完成后，以缓慢冷却方式降至室温，获得完整的 Nd:LuAG 单晶。随后将晶体置于 1350°C 下退火 72 h，以消除生长过程中产生的内应力。退火后的 Nd:LuAG 晶体片如图 2(a)所示。Nd:LuAG 晶体 ICP 测试结果如表 1 所示。取三次测试的平均值，根据各元素的原子量将质量分数换算为摩尔比，并以石榴石结构中固定的 $\text{Al} = 5$ 为基准进行归一化，得到样品的实际化学组成为 $\text{Nd}_{0.023}\text{Lu}_{2.696}\text{Al}_5\text{O}_{12}$ ， Nd^{3+} 的掺杂浓度为 0.85 at.%。 Nd^{3+} 与 Lu^{3+} 总占位数为 $2.719 < 3$ ，这可能与 ICP 对重稀土元素测试存在系统误差，以及 Nd:LuAG 晶体中存在微量氧过量或空位缺陷有关^[28,29]。

表 1 Nd:LuAG 晶体 ICP 测试结果
Table 1. ICP analysis results of the Nd:LuAG crystal.

Atom	Concentrations (ppm)		
	1	2	3
Nd	5496	5226	5929
Lu	767346	777061	771990
Al	219465	214882	221718

2.2. 表征

取晶体上一小块研磨成粉末，使用荷兰 Philips 的 X'Pert Pro X 射线粉末衍射仪对其进行 X 射线衍射分析，扫描范围为 10° 至 80° ，步长为 0.033° 。从生长的晶体中切取了一个薄片，并对垂直于(1,1,1)晶体轴方向的两个表面进行了抛光以便进行光谱测量。使用紫外/可见/近红外分光光度计(PerkinElmer Lambda-950)在室温下记录了 Nd:LuAG 晶体的透射光谱。发射光谱采用稳态/瞬态荧光光谱仪(Edinburgh FLSP-920)进行测试，步长为 1 nm。以 808 nm 连续波光纤耦合半导体激光器作为激发光源。荧光衰减曲线通过 OPO 脉冲激光激发 Nd:LuAG 晶体样品获得。

2.3. 激光实验

图 1 展示出了本实验中所采用的 LD 端面泵浦连续波(CW)单波长 Nd:LuAG 激光器的整体结构示意图，实验中采用一块尺寸为 $2 \times 2 \times 6 \text{ mm}^3$ 的 Nd:LuAG 晶体作为增益介质，晶体两端面均经过精细抛光处理，目的在于尽可能减小腔内散射损耗，使激光振荡更容易建立。泵浦源选用的是中心波长为 808 nm 的光纤耦合半导体激光器，其输出光纤的数值孔径为 0.22、纤芯直径为 200 μm 。泵浦光先通过一套专用的耦合光学系统进行准直和聚焦，在焦平面形成较为理想的点状光斑；该系统的放大倍率为 1:2，从而在空间上实现了泵浦光与增益介质之间较好的匹配。激光输出功率由功率计测量，谐振腔结构采用平平腔结构。为改善散热条件并减小热效应对激光输出的影响，Nd:LuAG 晶体外包铝箔后固定在水冷铜块上，冷却水温保持在约 18°C 。平面镜 M1 被用作输入耦合镜，其一侧镀有对 808 nm 波段高度透射的膜层，另一侧则对 1064 nm 具有高反射特性。平面镜 M2 作为输出耦合镜，在 1064 nm 处的透射率，分别为 20%、30%、40%和 50%，以便考察不同输出条件下的激光特性。平面镜 M3 为全反镜，在 1064 nm 波段有高反射率。

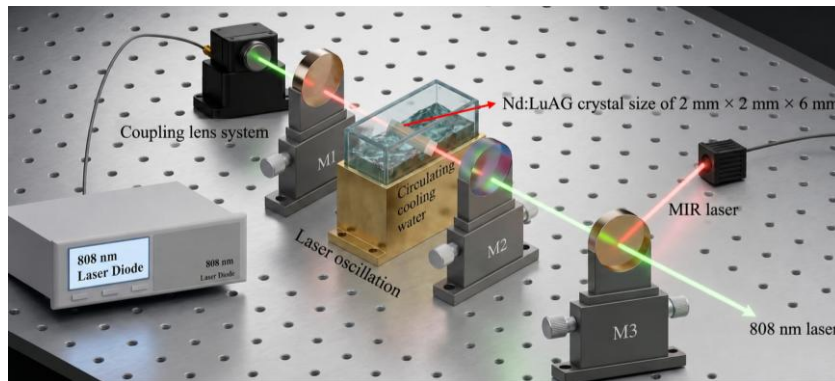


图 1 激光实验装置示意图

Fig. 1. Schematic diagram of the laser experimental setup.

3. 结果与讨论

3.1. Nd:LuAG 晶体的结构测试

对 Nd:LuAG 晶体粉末进行 XRD 测试，结果如图 2(b)所示。Nd:LuAG 晶体的所有衍射峰均与 LuAG 晶体标准卡高度一致，未发现杂峰。Nd:LuAG 晶体质量良好，保持 LuAG 的基本结构，仍为立方结构。为进一步研究 Nd:LuAG 晶体的结构特征，进行了 Rietveld 精修。如图 2(d)所示，精修后 χ^2 为 2.95 小于 3， R_p 和 R_{wp} 分别为 6.30% 和 7.78%，小于 10%。这表明精修结果与实验结果高度一致。表 2 展现 Nd:LuAG 晶体的结构特征，晶格常数 $a=b=c=11.911381 \text{ \AA}$ ，晶胞体积 $V=1689.985 \text{ \AA}^3$ ，空间群 $Ia\bar{3}d$ ，理论计算密度为 6.870 g/cm^3 。晶格常数和晶胞体积均比纯 LuAG 晶体的大，这可能是 Nd^{3+} 比 Lu^{3+} 半径大所导致的，图 2(e)为 Nd 晶体的 X 射线摇摆曲线（XRC）。衍射峰对称且无分裂现象，半峰宽（FWHM）为 0.064° ，表明晶体结晶质量优异，晶格完整性良好。

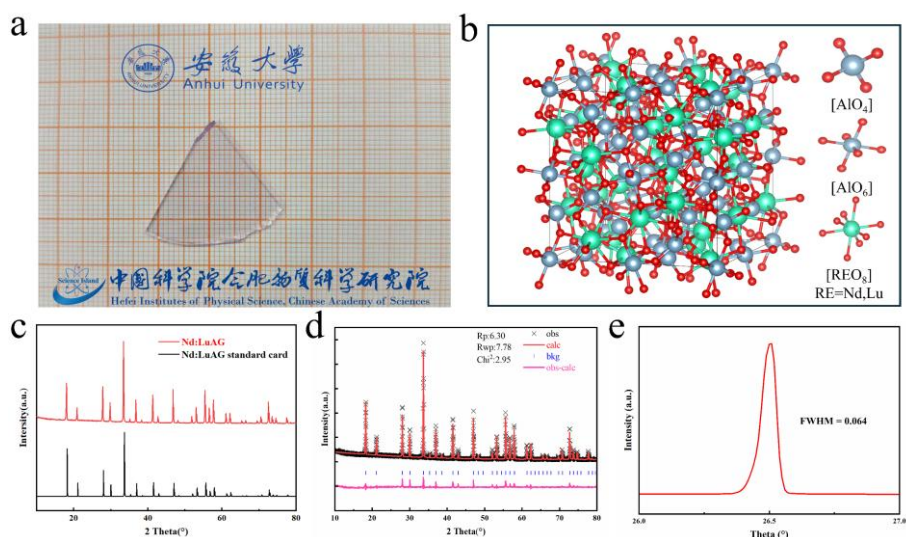


图 2 Nd:LuAG 晶体结构：(a) Nd:LuAG 晶体图片；(b) X 射线粉末衍射图；(c)晶胞结构；(d) FullProf 精修；(e) x 射线摇摆曲线图

Fig. 2. Crystal structure of Nd:LuAG: (a) photograph of the Nd:LuAG crystal; (b) X-ray powder diffraction pattern; (c) unit-cell structure; (d) Rietveld refinement results obtained using FullProf; (e) X-ray Rocking Curve Measurement

表 2 Nd:LuAG 的结构特征

Table 2. Structural characteristics of Nd:LuAG.

Atom	X	Y	Z	Occ
Al1	0.00000	0.00000	0.00000	1.029
Al2	0.37500	0.00000	0.25000	0.964
Lu	0.12500	0.00000	0.25000	0.972
Nd	0.12500	0.00000	0.25000	0.008
O	-0.04111	0.05349	0.15259	1.496

Nd:LuAG: $a=b=c=11.911381\text{\AA}$, $V=1689.985\text{\AA}^3$, Space group $Ia\bar{3}d$,

Density= 6.870g/cm^3 .

LuAG: $a=b=c=11.90600\text{\AA}$, $V=1687.7093\text{\AA}^3$, Space group $Ia\bar{3}d$.

3.2. Nd:LuAG 晶体的光谱性能

图 3(a)展示了 Nd:LuAG 晶体在 200-1200 nm 波长范围内的透过率，整体透过率超

过 85%。根据透过光谱可计算出 Nd:LuAG 晶体的吸收截面，计算公式如下：

$$a(\lambda) = -\frac{1}{d} \ln \frac{-(1-R)^2 + \sqrt{(1-R)^4 + 4R^2T^2}}{2R^2T} \quad (1)$$

$$R = \left(\frac{n-1}{n+1} \right)^2 \quad (2)$$

$$n = \frac{1 + \sqrt{(1-T)/(1+T)}}{1 - \sqrt{(1-T)/(1+T)}} \quad (3)$$

$$\sigma_{abs}(\lambda) = \frac{\alpha(\lambda)}{N_c} \quad (4)$$

T 为晶体片透过率， d 为晶体片厚度， R 为晶体片反射率， a 为吸收系数， n 为晶体片折射率， N_c 为 Nd^{3+} 离子浓度。

图 3(b)展示了 Nd:LuAG 晶体吸收截面，有 6 个吸收峰群分别位于 508-541、567-602、671-686、731-768、790-832 和 860-896，对应 $^4\text{I}_{9/2} \rightarrow ^4\text{G}_{9/2} + ^4\text{G}_{7/2} + ^2\text{K}_{13/2}$ 、 $^4\text{I}_{9/2} \rightarrow ^4\text{G}_{7/2} + ^4\text{G}_{5/2}$ 、 $^4\text{I}_{9/2} \rightarrow ^4\text{F}_{9/2}$ 、 $^4\text{I}_{9/2} \rightarrow ^4\text{S}_{3/2} + ^4\text{F}_{7/2}$ 、 $^4\text{I}_{9/2} \rightarrow ^2\text{H}_{9/2} + ^4\text{F}_{5/2}$ 和 $^4\text{I}_{9/2} \rightarrow ^4\text{F}_{3/2}$ 的跃迁，在 808 nm 处吸收达到最大值，吸收截面为 $2.0 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$ ，吸收系数为 2.45 cm^{-1} ，半峰宽 (FWHM) 为 8.02 nm 与 Nd:YAG (FWHM = 5.8 nm) 相比，其具有更宽的半峰宽，这可以有效降低泵浦源激光波长漂移对吸收效率的影响^[30]。

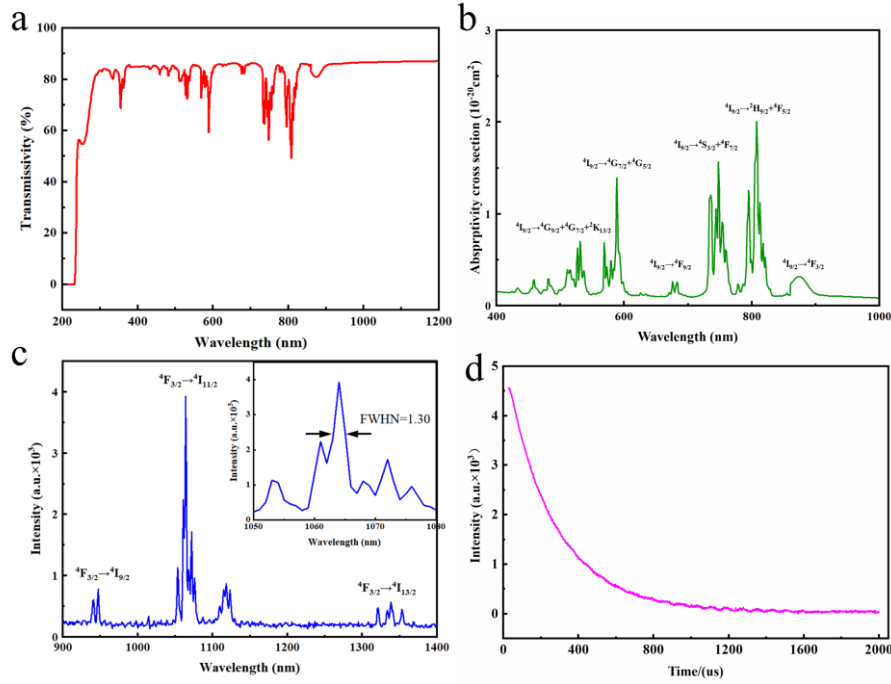


图 3 Nd: LuAG 晶体的光谱特性: (a) 透射光谱; (b) 吸收光谱; (c) 发射光谱; (d) 荧光衰减曲线

Fig. 3. Spectroscopic properties of the Nd:LuAG crystal: (a) transmission spectrum; (b) absorption spectrum; (c) emission spectrum; (d) fluorescence decay curve.

图 3(c)显示了 Nd:LuAG 晶体的发射光谱。在 900 到 1400 nm 范围内有 3 个发射峰群 937-951、1050-1228 和 1318-1356 nm 分别对应 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{9/2}$ 、 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$ 和 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ 的能级跃迁，其中最强峰处于 1064 nm，半峰宽为 1.30 nm，发射截面为 $1.85 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ 。与 Nd:YAG($2.24 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$)^[30]相比，Nd:LuAG 晶体有更小的发射截面，这有助于 Nd:LuAG 晶体在调 Q 和飞秒激光中积聚能量，实现更高的输出功率^[31]。荧光衰减曲线如图 3(d)所示，通过单指数拟合公式(5)进行拟合^[32]：

$$I(t) = I_0 \exp(-t/\tau) \quad (5)$$

其中， $I(t)$ 是荧光强度随时间 t 的函数， I_0 是初始荧光强度， τ 是荧光寿命。荧光寿命 $\tau = 266 \mu\text{s}$ 。与 Nd:YAG($220 \mu\text{s}$)^[33]相比 Nd:LuAG 晶体有更长的荧光寿命，表明其在调 Q 激光领域具有较大潜力^[23]。

3.3. Judd–Ofelt 理论

稀土元素掺杂晶体在电子跃迁过程中表现出丰富且独特的吸收与发射光谱特征。为揭示其内在物理机制，Brian Judd 和 George Ofelt 于 1962 年分别提出了 Judd-Ofelt (J-O) 理论。该理论通过引入三个经验谱强参数 (Ω_2 、 Ω_4 和 Ω_6)，实现了对晶体场作用下稀土离子 4f-4f 电偶极跃迁强度的定量描述，为系统分析稀土掺杂晶体的光学性质提供了重要理论基础^[34,35]。在此基础上，稀土离子能级间跃迁强度（由基态至激发态）通常通过实验振子强度 f_{exp} 表征，其可由吸收光谱积分获得，其计算公式如下：

$$f_{\text{exp}}(\alpha SLJ, \alpha' S' L' J') = \frac{4m\varepsilon_0 c^2}{Ne^2 \bar{\lambda}^2} \int \alpha(\lambda) d\lambda \quad (6)$$

$$\bar{\lambda} = \frac{\int \lambda \alpha(\lambda) d\lambda}{\int \alpha(\lambda) d\lambda} \quad (7)$$

其中， N 为单位体积内掺杂离子数量， ε_0 为真空介电常数， $\bar{\lambda}$ 为重心吸收波长， $\alpha(\lambda)$ 为波长在 λ 处的吸收系数。

振子强度并非由单一跃迁机制所决定，而是由不同多极跃迁机制共同贡献的结果。在稀土离子光学跃迁中，除电偶极（electric dipole, ED）跃迁外，还存在磁偶极（magnetic dipole, MD）以及更高阶的多极跃迁贡献。然而，高阶多极项通常较弱，在多数实际体系中可以近似忽略。因此，在实际分析中，跃迁强度通常主要由电偶极跃迁所主导，并在特定对称性条件下考虑磁偶极跃迁的修正作用。实验上所观测到的吸收强度，本质上反映了这些允许跃迁机制的综合贡献。

$$f_{\text{exp}}(\alpha SLJ, \alpha' S' L' J') = f_{\text{ed}}(\alpha SLJ, \alpha' S' L' J') + f_{\text{md}}(\alpha SLJ, \alpha' S' L' J') \quad (8)$$

其中， $f_{\text{ed}}(\alpha SLJ, \alpha' S' L' J')$ 和 $f_{\text{md}}(\alpha SLJ, \alpha' S' L' J')$ 分别代表电偶极子和磁偶极子强度。理论振子强度可以表达为：

$$f_{cal}(\alpha SLJ, \alpha' S'L'J') = \frac{8\pi^2 mc}{3h(2J+1)\bar{\lambda}} (\chi_{ed} S_{ed}(\alpha SLJ, \alpha' S'L'J') + \chi_{md} S_{md}(\alpha SLJ, \alpha' S'L'J')) \quad (9)$$

其中 h 为普朗克常数, m 是电子质量, c 为光速, J 是总角动量量子数。在晶体或玻璃这类介质中, 由于折射率 n 的存在, 外加光场在材料中的传播会发生变化, 稀土离子实际感受到的局域电场也就不再与外部光场完全一致。因此, 在计算跃迁强度时通常需要进行适当修正, 一般会通过引入两个修正系数 ($\chi_{ed} = (n^2 + 2)^2 / 9n$ 与 $\chi_{md} = n$) 来描述这种局域场效应。 S_{ed} 和 S_{md} 分别为电偶极和磁偶极跃迁线强, 计算公式如下:

$$S_{ed}(\alpha SLJ, \alpha' S'L'J') = \sum_{t=2,4,6} \Omega_t \left| \langle [\alpha SL]J \| U^{(t)} \| [\alpha' S'L']J' \rangle \right|^2 \quad (10)$$

$$S_{md}(\alpha SLJ, \alpha' S'L'J') = \left(\frac{h}{4\pi mc} \right)^2 \left| \langle [\alpha SL]J \| L + 2S \| [\alpha' S'L']J' \rangle \right|^2 \quad (11)$$

$\langle [\alpha SL]J \| U^{(t)} \| [\alpha' S'L']J' \rangle$ 为单位张量算子 $U(\lambda)$ 的约化元, $\langle J \| L + 2S \| J' \rangle$ 为磁偶算子的约化元。在进行近似计算时, 可以忽略它们与基质的关系在近似计算中的影响。 $\langle [\alpha SL]J \| U^{(t)} \| [\alpha' S'L']J' \rangle$ 可以从参考文献获得, Ω_t 参数可以通过实验测到的振子强度 f_{exp} 来拟合, 其计算方程如下:

$$\frac{\partial [\sum (f_{cal} - f_{exp})^2]}{\partial \Omega_t} = 0 \quad (12)$$

相对方差 R 的计算公式如下:

$$R = \sqrt{\frac{\sum [f_{ed}(exp) - f_{ed}(cal)]^2}{\sum f_{ed}^2(exp)}} \quad (13)$$

自发跃迁概率 A 的计算公式如下:

$$A(\alpha SLJ, \alpha' S'L'J') = \left[\frac{16\pi^3 e^2}{3h\epsilon_0 (2J'+1)\bar{\lambda}^3} n^2 \right] \times [(\chi_{ed} S_{ed}(\alpha SLJ, \alpha' S'L'J') + \chi_{md} S_{md}(\alpha SLJ, \alpha' S'L'J'))] \quad (14)$$

辐射寿命 τ_R 的计算公式如下:

$$\tau_R(\alpha SLJ) = \frac{1}{\sum_{\alpha' S' L' J'} A(\alpha SLJ, \alpha' S' L' J')} \quad (15)$$

荧光分支比 β 的计算公式如下：

$$\beta(\alpha SLJ, \alpha' S' L' J') = \frac{A(\alpha SLJ, \alpha' S' L' J')}{\sum_{\alpha' S' L' J'} A(\alpha SLJ, \alpha' S' L' J')} \quad (16)$$

基于上述计算方法，对 Nd:LuAG 晶体的 J-O 强度参数、线强度、振子强度、自发辐射跃迁概率、荧光分支比及辐射寿命进行了系统计算，相关结果汇总于表 3 和表 4 中。计算结果与实验测量之间的相对方差为 $R = 6.4\%$ ，表明理论模型与实验结果具有良好一致性，验证了计算的可靠性。所得谱强参数 $\Omega_2 = 0.26$ 、 $\Omega_4 = 3.49$ 和 $\Omega_6 = 3.95$ ，其中较小的 Ω_2 值表明 Nd^{3+} 所处局域晶体场具有较高的对称性，从而反映出电偶极跃迁受限制的特征。同时，光谱品质因数 $X_{\text{Nd}}(^4F_{3/2}) = \Omega_4/\Omega_6 = 0.88$ ，其变化反映了不同发射跃迁通道之间的竞争关系：随着光谱品质因数增大， $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{9/2}$ 跃迁的荧光分支比上升，而 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$ 及 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{13/2}$ 跃迁的分支比相应降低，表明辐射能量在各跃迁通道间发生重新分配。最终计算得到的荧光寿命为 $277 \mu\text{s}$ ，与实验值 $266 \mu\text{s}$ 基本一致，进一步证明了该理论模型对 Nd:LuAG 晶体光谱性质描述的准确性。

Table 3. Line strengths, oscillator strengths, and Judd–Ofelt intensity parameters.

Transitions from $^4\text{I}_{9/2}$	$\lambda_{\text{start}}-\lambda_{\text{e}}$ nd (nm)	Line strength		Oscillator strength		R(%)
		Sexp (10 ⁻²⁰ cm ²)	Scal (10 ⁻²⁰ cm ²)	fexp (10 ⁻⁶)	fcal (10 ⁻⁶)	
$^2\text{P}_{1/2}+^2\text{D}_{5/2}$	426-440	0.5547	0.2136	0.4122	0.6564	2.02
$^4\text{G}_{11/2}+^2\text{D}_{3/2}+^2\text{K}_{15/2}+^2\text{G}_{9/2}$	450-491	1.0419	0.4598	1.8123	1.2273	4.83
$^4\text{G}_{9/2}+^2\text{K}_{13/2}$	495-524	1.5609	0.7169	2.3705	1.8337	4.44
$^4\text{G}_{7/2}$	525-546	2.3245	0.9757	2.4787	2.7509	2.25
$^4\text{G}_{5/2}$	565-609	4.9202	2.4196	5.8426	5.8228	0.16
$^2\text{H}_{11/2}$	623-636	0.1390	0.0673	0.0591	0.1550	0.79
$^4\text{F}_{9/2}$	666-699	0.4571	0.2223	0.6315	0.5156	0.96
$^4\text{S}_{3/2}+^4\text{F}_{7/2}$	736-770	5.8609	2.9487	7.1156	6.9359	1.49
$^2\text{H}_{9/2}+^4\text{F}_{5/2}$	774-833	5.7706	2.7265	6.2850	6.7456	3.81
$^4\text{F}_{3/2}$	854-906	1.8228	0.7430	2.5776	2.1568	3.48
Relative square deviation: R = 6.4 %, $\Omega_2=0.26$, $\Omega_4=3.49$, $\Omega_6=3.95$						

表 4 Nd³⁺不同跃迁能级的辐射跃迁速率、分支比及辐射寿命

Table 4. Radiative transition probabilities, branching ratios, and radiative lifetimes of different Nd³⁺ transition levels.

⁴ F _{3/2} → ² S+ ¹ L _J	Sed(10 ⁻²²	fed(10 ⁻⁶	Aed(s ⁻¹)	β(%)	τrad(μs)
transitions	cm ²)	)			
⁴ I _{15/2}	11.1487	2.7599	17.2911	0.4791	
⁴ I _{13/2}	8.2597	2.8322	340.1661	9.4344	
⁴ I _{11/2}	2.1136	9.1921	1777.1149	49.2538	277
⁴ I _{9/2}	1.0160	5.2988	1473.4512	40.8325	

3.4. 温度分布、热应力分布

为探究 Nd:LuAG 晶体在泵浦光照射下温度分布与热应力分布，用 COMSOL 软件对其进行模拟。在直角坐标系下建立了 Nd:LuAG 晶体模型，尺寸为 2×2×6 mm³，热模拟参数如表 5 所示。泵浦光在晶体中传播通常可以近似视为高斯光束，其光强在横向呈高斯分布，并沿传播方向由于吸收作用逐渐衰减。因此，泵浦光在晶体内部的空间分布可表示为：

$$I(x, y, z) = \frac{2P_{in}}{\pi d^2} \exp\left(-\frac{2(x^2 + y^2)}{d^2} - az\right) \quad (17)$$

泵浦光在晶体中被吸收后转化为热量，其对应的体热源分布可表示为：

$$Q(x, y, z) = \frac{2\eta\alpha P_{in}}{\pi d^2} \exp\left(-\frac{2(x^2 + y^2)}{d^2} - az\right) \quad (18)$$

P_{in} 为激光功率， α 为吸收系数， d 为光斑半径， η 为激光的能量转换系数。由于 Nd:LuAG 晶体为立方晶系，热学性质各向同性^[37]，晶体内部的当温度变化为 ΔT 时，其形变分量可表示为：

$$\varepsilon_x = \varepsilon_y = \varepsilon_z = a\Delta T, \quad \gamma_{yz} = \gamma_{zx} = \gamma_{xy} = 0 \quad (19)$$

α 为晶体的线膨胀系数, $\Delta T = T - T_0$ 是相对于平衡(无应变)的温度偏移, ε 为晶体的正应变, γ 为晶体的切应变。

Nd:LuAG 晶体内部由于泵浦光吸收产生非均匀热源, 引起温度场分布不均, 进而产生热应力和热膨胀。由胡克定律可知晶体内总的形变量为

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon_x &= \frac{1}{E} [\sigma_x - \nu(\sigma_y + \sigma_z)] + \alpha \Delta T \\ \varepsilon_y &= \frac{1}{E} [\sigma_y - \nu(\sigma_x + \sigma_z)] + \alpha \Delta T \\ \varepsilon_z &= \frac{1}{E} [\sigma_z - \nu(\sigma_y + \sigma_x)] + \alpha \Delta T \\ \gamma_{yz} &= \frac{2(1+\nu)}{E} \tau_{yz} \\ \gamma_{zx} &= \frac{2(1+\nu)}{E} \tau_{zx} \\ \gamma_{xy} &= \frac{2(1+\nu)}{E} \tau_{xy} \end{aligned} \right\} \quad (20)$$

E 为晶体的弹性模量, σ 为晶体的正应力, τ 为晶体的切应力, ν 为晶体的泊松比。

公式(20)求解应力分量, 应力分量为:

$$\left. \begin{aligned} \sigma_x &= \frac{E}{1+\nu} \left[\frac{\nu}{1-2\nu} e + \varepsilon_x \right] - \frac{\alpha E \Delta T}{1-2\nu} \\ \sigma_y &= \frac{E}{1+\nu} \left[\frac{\nu}{1-2\nu} e + \varepsilon_y \right] - \frac{\alpha E \Delta T}{1-2\nu} \\ \sigma_z &= \frac{E}{1+\nu} \left[\frac{\nu}{1-2\nu} e + \varepsilon_z \right] - \frac{\alpha E \Delta T}{1-2\nu} \\ \tau_{xy} &= \frac{E}{2(1+\nu)} \gamma_{xy} \\ \tau_{yz} &= \frac{E}{2(1+\nu)} \gamma_{yz} \\ \tau_{zx} &= \frac{E}{2(1+\nu)} \gamma_{zx} \end{aligned} \right\} \quad (21)$$

e 为体积应变, $e = \varepsilon_x + \varepsilon_y + \varepsilon_z$ 。其中:

$$\varepsilon_x = \frac{\partial u}{\partial x}, \varepsilon_y = \frac{\partial v}{\partial y}, \varepsilon_z = \frac{\partial w}{\partial z}, \gamma_{xy} = \frac{\partial v}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial y}, \gamma_{yz} = \frac{\partial w}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial z}, \gamma_{zx} = \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial x}$$

热应力表达式为：

$$\sigma_{VM} = \left\{ \frac{1}{2} \left[(\sigma_x - \sigma_y)^2 + (\sigma_y - \sigma_z)^2 + (\sigma_z - \sigma_x)^2 + 6(\tau_{xy}^2 + \tau_{yz}^2 + \tau_{zx}^2) \right] \right\}^{\frac{1}{2}} \quad (22)$$

如图 4 展示 Nd:LuAG 晶体的温度分布和热应力分布。图 4(a)中展现出温度沿中心位置到边缘位置逐渐降低，最高温度 364.42 K，图 4(b)中展示出热量主要存在泵浦照射端，泵浦光产热影响贯穿了晶体。图 4(c)展示出应力分布主要集中在 xy 面四边的中心位置，最大应力值为 65.86 MPa。图 4(d)展示应力主要分布在上下两端和中心位置。这为 Nd:LuAG 晶体在激光实验中防止晶体开裂和减少热透镜的研究提供理论基础。

表 5 Nd:LuAG 晶体热模拟参数

Table 5. Thermal simulation parameters of the Nd:LuAG crystal.

Parameter	Values
热导率	9.6 W/(m·K)
激光的能量转换系数	0.24 ^[36]
泵浦功率	20 W
空气的传热系数	50 W/(m ² ·K)
金属夹具的传热系数	2E4 W/(m ² ·K)
环境温度	293.15 K
晶体边界温度	293.15 K
泵浦光束半径	400 μm
泊松比	0.25 ^[37]
热膨胀系数	6.26E-6 1/K ^[37]
杨氏模量	2.87E11 Pa ^[15]

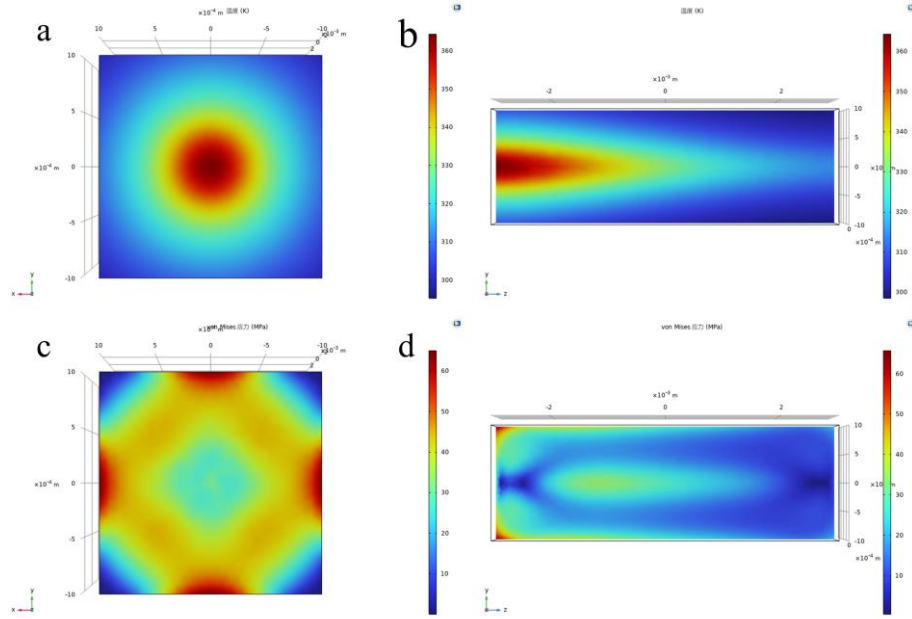


图 4 Nd:LuAG 热模拟：(a)端面温度分布；(b) 径向切面温度分布；(c) 端面热应力分布；(d) 径向切面热应力分布

Fig. 4. Thermal simulation of Nd:LuAG: (a) end-face temperature distribution; (b) radial cross-sectional temperature distribution; (c) end-face thermal stress distribution; (d) radial cross-sectional thermal stress distribution.

3.5. Nd:LuAG 的激光性能

通过不同耦合输出镜透射率，研究了 0.85 at.%Nd:LuAG 晶体在 808 nmLD 泵浦连续波（CW）模式下的激光性能,如图 5(a)所示。耦合输出镜透射率在 20%、30%、40%和 50%最大输出功率分别为 6.030、7.020、8.100 和 5.790 W，对应的斜效率为 36.85%、36.28%、40.03%和 24.25%，激光阈值均为 0.1 W。当耦合输出镜透射率为 40%时激光效率为最佳。在泵浦功率较低时，激光输出功率随泵功率近似呈线性增长关系；随着泵功率的进一步增加，输出功率逐渐进入饱和区。在饱和区内继续提高泵功率，输出功率提升趋于平缓。该现象主要源于高泵功率条件下晶体热透镜效应显著增强，从而限制了激光输出功率的进一步提升^[38]。由表 6 可知，本工作获得的 Nd:LuAG 晶体最大连续波输出功率达到 8.10 W，斜效率为 40.03%，与已报道 Nd:YAG 晶体和 Nd:LuAG

陶瓷的激光性能相当，并优于部分 Nd:LuYGG 晶体的报道结果，表明 Nd:LuAG 晶体具有优异的激光输出能力和良好的应用潜力。图 5(b)展示了 Nd:LuAG 晶体 $^4F_{3/2} \rightarrow ^4I_{11/2}$ 能级跃迁的激光光谱，发射峰在 1064.5 nm，半峰宽 FWHM = 1.18 nm。

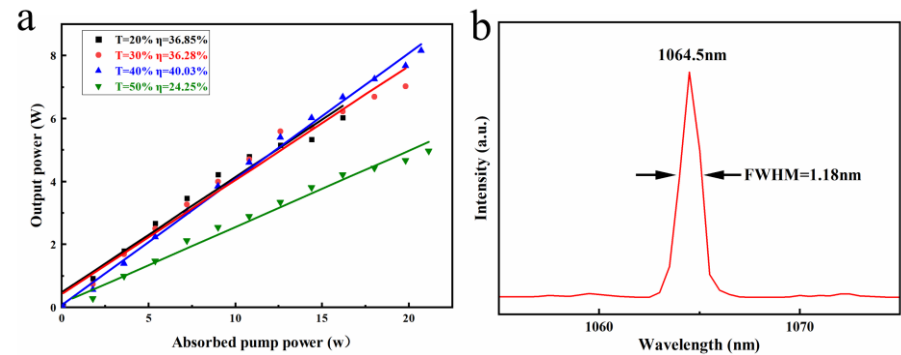


图 5 Nd:LuAG 晶体在 1064 nm 波长连续波模式: (a) 不同耦合输出镜的输出功率; (b)激光光谱。

Fig. 5. Continuous-wave laser performance of the Nd:LuAG crystal at 1064 nm: (a) output power under different output couplers; (b) laser spectrum.

表 6 不同 Nd 掺杂石榴石激光材料连续波激光性能比较

Table 6. Comparison of the continuous-wave laser performance of different Nd-doped garnet laser materials.

Materia	Size(mm)	Nd	Maximum output	Slope
		concentration	power(W)	efficiency
Nd:LuAG crytstal	2×2×6	0.85 at. %	8.1	40.03%
Nd:LuAG ceramic ^[27]	d = 5	1 at. %	8.4	43.6%
Nd:YAG crystal ^[39]	Φ3×10	1 at. %	10	28.5%
Nd:YAG ceramic ^[40]	3×3×10	1 at. %	7.74	44.8%
Nd:LuYGG crytstal ^[41]	1×12×10	0.29 at. %	5.47	23.0%
Nd:LuYAG crytstal ^[42]	3×3×7	1 at. %	8.51	44.0%

在优化耦合输出镜透射率为 40%条件下，研究 Nd:LuAG 晶体在不同的脉冲宽度和工作频率下的准连续波激光性能。结果如图 6 所示，在 500 Hz 工作频率和 1.9 ms 脉冲

宽度下，最大激光输出功率为 3.825 W，对应斜效率为 14%。与连续波（CW）运行模式相比，QCW 模式下的输出功率和斜效率均有所降低。这主要是由于 LD 脉冲泵浦过程中，增益介质内粒子数反转的建立与耗尽呈周期性变化，激光振荡仅在有限脉宽内进行，导致储存能量无法得到持续、充分的提取。此外，有限占空比使平均泵浦功率低于连续波工作条件，从而限制了反转粒子数密度的积累和激光输出功率的进一步提升^[43]。因此，在本实验所采用的最大泵浦功率条件下，Nd:LuAG 晶体的 QCW 激光性能仍有进一步提升空间。

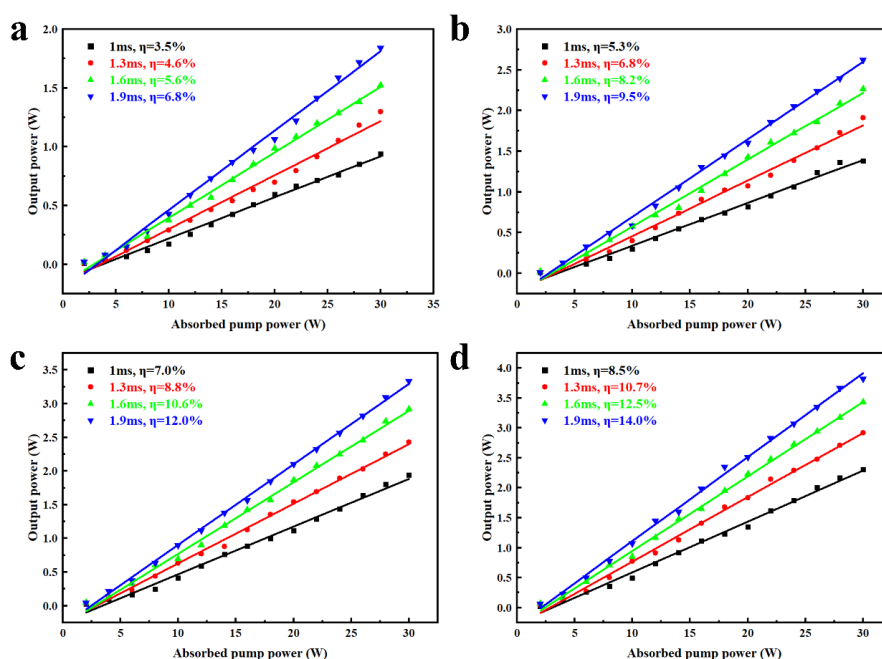


图 6 Nd:LuAG 晶体在 1064 nm 波长准连续波模式下的输出功率：(a) 重复频率为 200 Hz；(b) 重复频率为 300 Hz；(c) 重复频率为 400 Hz；(d) 重复频率为 500 Hz

Fig. 6. Output power of the Nd:LuAG crystal under quasi-continuous-wave operation at 1064 nm: (a) repetition rate of 200 Hz; (b) repetition rate of 300 Hz; (c) repetition rate of 400 Hz; (d) repetition rate of 500 Hz.

4. 结论

本研究通过 Cz 方法成功长出了 Nd:LuAG 晶体。通过 ICP 测试得知 Nd:LuAG 晶体的化学式为 $\text{Nd}_{0.023}\text{Lu}_{2.696}\text{Al}_5\text{O}_{12}$ ，XRD 结果表明 Nd:LuAG 晶体为立方结构，通过

FullProf精修得知晶格常数 $a=b=c=11.911381 \text{ \AA}$ ，晶胞体积 $V = 1689.985 \text{ \AA}^3$ ，空间群 $Ia\bar{3}d$ ，理论计算密度为 6.870 g/cm^3 ，XRC 结果表明 Nd:LuAG 晶体质量优异。研究了 Nd:LuAG 晶体在室温下的吸收和发射光谱，并确定了一些与激光实验相关的材料参数，吸收光谱半峰宽和发射光谱半峰宽分别为 8.02 nm 、 1.30 nm ，荧光寿命 $\tau = 266 \text{ \mu s}$ 。通过 Judd-Ofelt 理论计算了 Nd:LuAG 晶体的 J-O 强度、线强、自发跃迁概率、荧光分支比和辐射寿命，计算误差 $R=6.4\%$ ， Ω_2 、 Ω_4 和 Ω_6 分别为 0.26 、 3.49 和 3.95 ，光谱品质因数 $X_{\text{Nd}}(^4F_{3/2})$ 为 0.88 。用 COMSOL 软件对 Nd:LuAG 晶体进行温度分布模拟和热应力模拟，最高温度为 364.42 K ，最大应力值为 65.86 MPa 。在 Nd:LuAG 晶体的激光实验中，使用不同透射率(20% 、 30% 、 40% 和 50%)的输出镜，实现了最大输出功率分别为 6.030 、 7.020 、 8.100 和 5.790 W ，对应的斜效率为 36.85% 、 36.28% 、 40.03% 和 24.25% ，激光阈值均为 0.1 W 。在优化输出镜为 40% 的情况下，测得准连续波激光实验在 500 Hz 工作频率和 1.9 ms 脉冲宽度下，实现了最大激光输出功率为 3.825 W ，对应斜效率为 14.0% 。

参考文献

- [1] Fan T Y, Byer R L 2002 *IEEE J. Quantum Electron.* **24** 895
- [2] Marabella L J 1994 *Proc. SPIE* **2214** 178
- [3] Khalkhal E, Rezaei-Tavirani M, Zali M R 2019 *J. Las. Med. Sci.* **10** S104
- [4] Brauch U, Röcker C, Graf T 2022 *Appl. Phys. B* **128** 58
- [5] Taguchi N, Ihara M, Tsunekane M 1995 *Rev. Laser Eng.* **23** 864
- [6] Byer R L 1988 *Science* **239** 742.
- [7] Chen F, Sun J, Yan R 2019 *Sci. Rep.* **9** 5620

- [8] Yan R, Zhou Y, Li X 2020 *Opt. Laser Technol.* **131** 106444
- [9] Hao Q, Pang S, Liu J 2018 *Appl. Opt.* **57** 6491
- [10] Dong L, Xu Y, Yao Y 2017 *RSC Adv.* **7** 5096.
- [11] Rajagukguk J, Sinaga B, Sihombing E 2018 *Mater. Today: Proc.* **5** 14998
- [12] Harada R H, Suzuki C K 1965 *Appl. Opt.* **4** 225
- [13] Moura A L, da Silva R F, Barbosa-Silva R 2025 *J. Lumin.* **280** 121109
- [14] Beil K, Fredrich-Thornton S T, Tellkamp F, et al. 2010 *Opt. Express* **18** 20712.
- [15] Aggarwal R, Ripin D, Ochoa J, et al. 2005 *Appl. Opt.* **98** 1
- [16] Huang C, Li S, Zhao C, et al. 2023 *Opt. Lett.* **48** 5507
- [17] Kuwano Y, Suda K, Ishizawa N, et al. 2004 *J. Cryst. Growth* **260** 159
- [18] Xu X D, Wang X D, Meng J Q, et al. 2009 *Laser Phys. Lett.* **6** 678
- [19] Ding L, Zhang Q, Luo J, et al. 2011 *J. Alloys Compd.* **509** 10167
- [20] Fu Y, Li J, Liu Y, et al. 2016 *J. Eur. Ceram. Soc.* **36** 655.
- [21] Xu X D, Di J Q, Tan W D, et al. 2012 *Laser Phys. Lett.* **9** 406
- [22] Wang X D, Xu X D, Zang T C, et al. 2004 *J. Inorg. Mater.* **19** 435 (in Chinese) [王晓丹, 徐晓东, 臧涛成, 等 2004 无机材料学报 **19** 435]
- [23] Di J Q, Xu X D, Meng J Q, et al. 2011 *Laser Phys.* **21** 844
- [24] Wagner N, Herden B, Dierkes T, et al. 2012 *J. Eur. Ceram. Soc.* **32** 3085
- [25] Ye Y, Zhu H, Duan Y, et al. 2015 *Opt. Mater. Express* **5** 611
- [26] Ma C, Zhu J, Nan X, et al. 2017 *J. Alloys Compd.* **727** 912
- [27] Chu C, Wang S, Li C, et al. 2025 *Opt. Eng.* **64** 036102
- [28] Olesik J W. 2020 *Spectrosc.* **35** 18

- [29] Douvris C, Vaughan T, Bussan D, et al. 2023 *Sci. Total Environ.* **905** 16724
- [30] Wang Z, Yannick G, Xu C, et al. 2026 *J. Lumin.* **290** 121698
- [31] Hao Q, Pang S, Liu J, et al. 2018 *Appl. Opt.* **57** 6491
- [32] Huang C, Li S, Zhao C, et al. 2023 *Opt. Lett.* **48** 5507
- [33] Yuan M, Cao Y, Zhou T, et al. 2022 *Ceram. Int.* **48** 27799
- [34] Li C L, Sun J, Zeng F M, et al. 2006 *Opt. Tech.* **32** 193 (in Chinese) [李昌立, 孙晶, 曾繁明, 等 2006 光学技术 **32** 193]
- [35] Hehlen M P, Brik M G, Krämer K W. 2013 *J. Lumin.* **136** 221
- [36] Koechner W. 2013 *Solid-State Laser Engineering* (Springer)
- [37] Li S Y, Shakeel S, Ali S, et al. 2025 *Ceram. Int.* **51** 29811
- [38] Yu B H, Ni Y J, Lou G Y. 2004 *J. Xinyang Norm. Univ. Nat. Sci. Ed.* **17** 166 (in Chinese) [余本海, 倪永军, 娄国营 2004 信阳师范学院学报 (自然科学版) **17** 166]
- [39] Yang S T, Imai Y, Oka M, et al. 1996 *Opt. Lett.* **21** 1676
- [40] He Y, Ma Y, Li J, et al. 2016 *Opt. Laser Technol.* **81** 46
- [41] Yang M L, Zhang Q L, Ma H J, et al. 2026 *Cryst. Growth Des.* **26** (in press)
- [42] Di J Q, Xu X D, Tan W D, et al. 2013 *Laser Phys. Lett.* **10** 095801
- [43] Wang Y, Wang P, Chen Y, et al. 2019 *Opt. Commun.* **435** 433

Structural, Spectroscopic Properties and Laser

Performance of Nd:LuAG Crystals*

WANG Tao^{1, 2, 3}, ZHANG Qi², ZHANG Qingli^{2, 3}, SUN Guihua^{2, 3*}, YANG Mingliang^{3*}, DOU Renqin³,
WANG Xiaofei³, QIAN Wenli^{3, 4}, PENG Zhangliang^{1, 3}, ZHANG Chuancheng^{3, 4}

1. Anhui University, Hefei 230601, China

2. Anhui Huotian Crystal Technology Co., Ltd., Tongling 244000, China

3. Anhui 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, China

4. University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China

Abstract

Nd crystals have attracted considerable attention as promising gain media for high-power solid-state lasers due to their excellent thermal conductivity, mechanical properties, and favorable spectroscopic characteristics. In this work, a high-quality Nd single crystal was successfully grown by the Czochralski method, and its structural, spectroscopic, thermal, and laser properties were systematically investigated. The actual composition of the crystal was determined by inductively coupled plasma analysis, revealing an Nd³⁺ doping concentration of 0.85 at.%. X-ray diffraction combined with Rietveld refinement confirmed that the crystal maintains a cubic garnet structure with a lattice constant of 11.911381 Å, a unit-cell volume of 1689.985 Å³, and a calculated density of 6.870 g/cm³. The optical transmission, absorption, emission spectra, and fluorescence decay characteristics were measured to evaluate the potential for laser applications. The absorption cross section at 808 nm was calculated to be 2.0×10^{-20} cm² with a full width at half maximum of 8.02 nm, indicating efficient absorption of diode-laser pumping. The strongest emission peak was located at 1064 nm with an emission cross section of 1.85×10^{-19} cm², and the fluorescence lifetime was determined to be 266 μs. Furthermore, the Judd–Ofelt theory was employed to analyze the radiative properties of Nd, and the calculated intensity parameters Ω_2 , Ω_4 , and Ω_6

were 0.26, 3.49, and 3.95, respectively, demonstrating good agreement between the theoretical and experimental results. The thermal distribution and thermal stress evolution under laser pumping were further investigated using COMSOL simulation, revealing a maximum temperature of 364.42 K and a maximum thermal stress of 65.86 MPa. Finally, continuous-wave laser experiments at 1064 nm were performed, and a maximum output power of 8.10 W with a slope efficiency of 40.03% was achieved using a 40% output coupler. These results demonstrate that the Nd crystal possesses excellent optical quality, favorable thermal stability, and high laser output capability, making it a promising gain material for high-power solid-state laser applications.

Keywords: Nd:LuAG crystal; laser; thermal simulation; Judd–Ofelt theory

* Project supported by the Open Research Project of the National Key Laboratory of Crystal Materials (Grant No. KF2603), the National Key R&D Program of China (Grant Nos. 2023YFB3507401 and 23YFB3507403), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 52272011), and the Youth Innovation Promotion Association of CAS (Grant No. 2023463).

† Corresponding author. E-mail: ghsun@aiofm.ac.cn

† Corresponding author. E-mail: yangmingliang@mail.ustc.edu.cn

The first author. E-mail: q24201116@stu.ahu.edu.cn