

可见波段超快脉冲激光研究进展

张玉霞, 于浩海*, 张怀金**

山东大学晶体材料研究所晶体材料国家重点实验室, 山东 济南 250100

摘要 超快脉冲激光因具有超短的响应时间及较高的峰值功率而在激光加工及强场物理学等领域有重要应用。随着蓝光激光二极管及掺杂镨离子激光增益介质的发展, 可见波段超快脉冲激光迅速发展, 主要综述了可见波段超快脉冲激光的研究进展及现状, 详细描述了克尔透镜锁模、高重复频率吉赫兹自锁模及基于可饱和吸收体的锁模等技术在可见光波段的应用, 并展望了可见波段超快激光的发展方向及前景。

关键词 非线性光学; 超快光学; 可见激光; 锁模

中图分类号 O73

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201946.0508011

Research Progress of Ultrafast Pulsed Lasers in Visible Range

Zhang Yuxia, Yu Haohai*, Zhang Huaijin**

State Key Laboratory of Crystal Materials, Institute of Crystal Materials, Shandong University,
Jinan, Shandong 250100, China

Abstract An ultrafast pulsed laser has important applications in some fields, such as laser processing and strong field physics, because of its ultrashort response time and ultrahigh peak power. Accordingly, the ultrafast pulsed laser has been rapidly developed in the visible range with the development of the blue laser diodes and the praseodymium-ion-doped laser gain media. In this study, we mainly review the research progress and status of ultrafast pulsed lasers in the visible range, and describe the applications of the mode-locking technology in the visible range, including Kerr-lens mode-locking, high repetition rate GHz-frequency self-mode-locking, and mode-locking based on saturable absorbers. Further, the further development direction and perspectives of ultrafast visible lasers are prospected.

Key words nonlinear optics; ultrafast optics; visible lasers; mode-locking

OCIS codes 320.7090; 140.7300; 190.7110; 140.4050

1 引 言

超快脉冲激光具有超短响应时间、较高峰值功率等特点, 在精细加工、精密计量、激光手术等工业及医疗领域发挥着极其重要的作用^[1-2]。1999 年诺贝尔化学奖获得者开辟了飞秒化学新学科, 2005 年诺贝尔物理学奖获得者利用超快激光实现了光学频率梳, 均体现了超快脉冲激光在科研领域的重要作用。2018 年诺贝尔物理学奖授予三名科学家, 表彰他们在激光物理学领域的突破性贡献, 其中 Mourou 和 Strickland 提出的“啁啾脉冲放大”技术

为实现更短和更强的脉冲激光打下基础, 更加证实了超快脉冲激光研究的重要性。同时, 2018 年欧洲发明家终身成就奖授予瑞士超快激光专家 Keller 女士, 其团队所研发的半导体可饱和吸收反射镜 (SESAM) 为获得超快脉冲激光提供了一种简单而实用的方法^[3], 并将该方法广泛应用于超快激光器。可见, 超快激光的研究对科学和社会的发展具有重要价值和深远意义, 已经成为当前科学研究的重点方向之一。

可见光因其波长短、人眼可见的特点在物理现象展示、激光炫目武器、激光显示及信息存储等方面

收稿日期: 2019-01-10; **修回日期:** 2019-02-02; **录用日期:** 2019-02-18

基金项目: 国家自然科学基金(51772173, 51632004)、国家重点研发计划(2016YFB1102301, 2016YFB0701002)、山东省重点研发计划(2017CXGC0414)

* **E-mail:** haohaiyu@sdu.edu.cn; ** **E-mail:** huaijinzhang@sdu.edu.cn

有独特应用^[4-5]。很多稀土离子,如 Pr^{3+} 、 Sm^{3+} 、 Tb^{3+} 等,均存在可见波段的能级跃迁,即通过合适的抽运源抽运即可直接产生可见激光,这也是全固态小型化可见激光的发展趋势^[6]。近年来,随着抽运源及激光技术的发展,可见激光技术也得到了蓬勃发展。2014年诺贝尔物理学奖授予日本及美国的三位科学家,表彰他们在蓝色发光二极管(LED)方面的发现,蓝色激光二极管(LD)也迅速发展,目前,LD直接抽运掺 Pr^{3+} 激光增益介质产生的多个波长连续可见激光已实现瓦级功率输出^[6],而关于可见激光的探索已经转向可见脉冲激光研究。光调制器件(调Q开关或锁模调制器件)是脉冲激光的重要组成部分^[7]。近年来,可见波段调Q脉冲激光技术的发展迅速,尤其是随着新型低维材料的发展,过渡族二硫属化物^[8]、黑磷^[9]、量子点^[10]、拓扑绝缘体^[11]及贵金属纳米颗粒^[12]等新型材料均用于掺 Pr^{3+} 激光增益介质中,以实现全固态及全光纤态调Q脉冲激光的输出,而可见波段的超快脉冲激光研究较少,故研究人员开始转向可见波段超快脉冲激光的研究。

本文综述了可见波段超快脉冲激光的研究现状,并重点介绍了克尔透镜锁模、高重复频率自锁模及基于可饱和吸收体的锁模技术在可见波段的研究现状。通过对可见光范围内脉冲激光器的总结和回顾,并结合可见波段光调制器件的筛选准则,分析可见脉冲激光器的潜在特点,预测可见波段光调制器件和锁模脉冲激光的发展趋势。

2 克尔透镜超快脉冲激光

克尔透镜锁模技术是一种简单的超快脉冲激光产生方法,该方法不需要复杂的光调制器件,而是利用增益介质产生的高次非线性效应,即克尔效应实现超短脉冲激光输出^[13]。该方法利用增益介质的非线性克尔效应使得激光腔中的光束产生自聚焦,由于脉冲中同时存在高功率密度和低功率密度的光束,其中的高功率密度部分被聚焦成光斑较小的光束,而低功率密度部分聚焦成光斑较大的光束,此时在腔内放置一个小孔光阑,光斑较小的光束可以通过,而光斑较大的光束被阻挡,即具有高功率密度的光束通过小孔光阑,而具有低功率密度的光束被小孔光阑挡住。当脉冲在腔内多次往返时,低功率密度部分被损耗掉,而高功率密度部分由于不断通过增益介质而被放大,在时域上表现为脉冲不断变窄,从而获得窄脉冲输出。早期关于掺 Pr^{3+} 激光增益

介质的锁模研究主要针对克尔透镜锁模。

Ruan等^[14]首次报道了 $\text{Pr}^{3+}:\text{YLiF}_4$ 激光晶体在波长为 639 nm 的克尔透镜锁模实验。研究人员采用 6 个镜子组成的复合环形腔结构进行实验,其抽运源采用功率为 3.3 W、波长为 476 nm 的氩离子激光器。启动机制是克尔透镜锁模方法的重要组成部分,通常包括添加吸收体、主动调制器及机械振动等方法。Ruan等采用机械振动的方式获得了脉冲宽度为 50 ps 的锁模脉冲激光输出,然后又将硫化镉硒胶态玻璃作为饱和吸收体启动克尔透镜锁模,并增加狭缝来获得稳定的锁模激光输出,最终获得了平均输出功率为 20 mW、脉冲宽度为 8 ps 的稳定连续锁模脉冲激光输出,这是最早关于掺 Pr^{3+} 激光增益介质的锁模研究。Ruan等认为基于 Pr^{3+} 离子丰富的能级跃迁,小型化、全固态、可调谐的皮秒可见脉冲激光器具有广阔的应用前景,故在 1995 年又报道了波长为 607 nm 的橙光克尔透镜锁模脉冲实验,并获得了脉冲宽度为 10 ps 的超快脉冲激光输出^[15]。Tong等^[16]也报道了掺 Pr^{3+} 激光增益介质的克尔透镜锁模激光输出,该实验采用的是 X 型折叠腔,同样以波长为 476 nm 的氩离子激光器为抽运源,但该实验采用一对德国肖特公司生产的 SF10 棱镜进行色散补偿,其克尔透镜锁模实验的启动方式是机械振动法,通过轻击输出镜,获得平均输出功率为 15 mW、波长为 607 nm 橙色脉冲激光输出,其最窄的脉冲宽度为 15 ps,重复频率为 70 MHz。Tong等在实验中还观察到 140 MHz 重复频率的脉冲激光输出,并将其归因于对称空腔设计。在这种双稳态激光系统中,激活介质放置在腔体的中心,类似于具有超快饱和吸收器的被动锁模激光器。在这种情况下,一般可以实现双脉冲运行和周期加倍的现象,这也是染料激光器中的常见现象。Sutherland等^[17-18]注意到 $\text{Pr}^{3+}:\text{YLiF}_4$ 激光晶体具有波长为 613 nm 的振动峰,且该峰具有较大的光谱宽度,具有实现飞秒激光输出的潜能,于是采用和 Tong等^[16]相同的腔型设计获得脉冲宽度为 400 fs、波长为 613 nm 的激光输出,结果如图 1(a)所示,其激光光谱宽度为 0.98 nm[图 1(b)],接近双曲正割函数的有效带宽转换极限。Sutherland等的实验同样采用机械振动法启动实验,并使用一对 F2 棱镜来补偿腔内色散,不同的是该实验采用双端抽运方式进行抽运。该实验报道的飞秒激光输出脉冲是目前掺 Pr^{3+} 激光晶体获得的最短脉冲,也是唯一的飞秒脉冲输出。

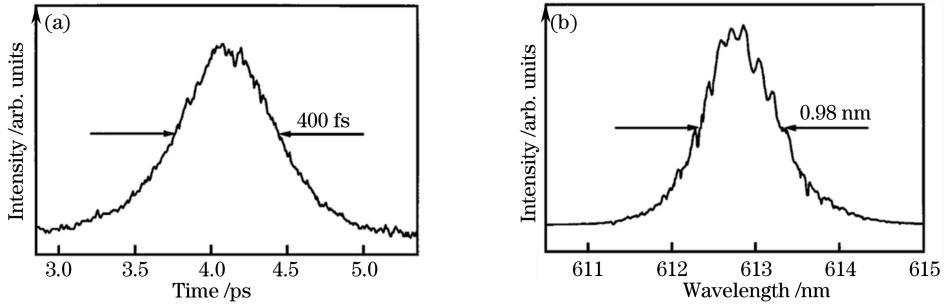


图 1 $\text{Pr}^{3+}:\text{YLiF}_4$ 克尔透镜锁模 613 nm 波长飞秒脉冲激光表征。(a) 自相关图谱; (b) 激光光谱^[17]

Fig. 1 Characterization of $\text{Pr}^{3+}:\text{YLiF}_4$ Kerr-lens mode-locked femtosecond pulsed laser with wavelength of 613 nm. (a) Autocorrelation map; (b) laser spectrum^[17]

近年来,随着蓝光抽运源的发展,LD 抽运掺 Pr^{3+} 激光增益介质的克尔透镜锁模也受到研究人员的广泛关注。2016 年, Iijima 等^[19]研究了 LD 双端抽运 $\text{Pr}^{3+}:\text{YLiF}_4$ 克尔透镜锁模,采用 SF57 玻璃片作为非线性介质,通过轻击输出镜,获得了脉冲宽度为 400 ps、波长为 639 nm 的锁模脉冲激光输出,其克尔透镜锁模脉冲输出不稳定,通过计算预测,可通过增大抽运功率来实现稳定克尔透镜锁模脉冲输出。从可见波段克尔透镜锁模现状看,虽然克尔透镜锁模是获得超快脉冲的重要技术,但掺 Pr^{3+} 超快脉冲激光的脉冲宽度仍处于皮秒量级,其中 LD 抽运的克尔透镜锁模研究更为有限,其脉冲宽度仍为几百皮秒,因此通过克尔透镜效应获得可见波段超快脉冲激光输出仍有很大的研究空间和较高的研究价值,必将成为超快激光研究的热点。

3 高重复频率吉赫兹超快锁模脉冲激光

高重复频率超快脉冲激光是指具有皮秒或飞秒量级的脉冲宽度,并具有吉赫兹量级高重复频率的脉冲激光。高重复频率吉赫兹脉冲激光在大容量远程通信^[20]、光频率梳光谱学^[21]及光学时钟分布^[22]等方面有重要应用,目前掺 Nd^{3+} 及掺 Yb^{3+} 的激光增益介质已实现 2~6 GHz 甚至更高重复频率的近红外脉冲激光输出^[23-24],因此高重复频率吉赫兹脉冲激光输出也成为超快脉冲激光领域的重要研究课题。由于锁模脉冲激光的重复频率和谐振腔长有关,因此要想获得吉赫兹量级的重复频率,其谐振腔长度应很短。借鉴近红外波段高重复频率超快脉冲激光的研究经验,以自锁模研究现状为基础,本课题组于 2016 年以 $\text{Pr}^{3+}:\text{GdLiF}_4$ 晶体为激光增益介质实现了高重复频率吉赫兹锁模脉冲激光输出^[25]。

该实验的原理也是克尔透镜效应。由于实际使用的抽运源光束为近高斯分布,因此在增益介质中会产生畸变热透镜效应,该热透镜畸变会引起腔内衍射损耗的改变,根据克尔自聚焦效应可知,在锁模过程中衍射损耗总是起促进锁模的作用。对于锁模而言,增益光阑与激光光斑大小有关,小的激光光斑能产生较大的平均增益进而促进锁模过程。根据此前的研究,估算了可见波段自锁模双程衍射损耗、平均增益及启动阈值^[26-29]。当吸收抽运功率为 1 W 时,激光模斑改变量约为 $0.1 \mu\text{m}$,而 $0.1 \mu\text{m}$ 的模斑减小值将导致双程衍射损耗减小量的量级约为 10^{-3} ,平均增益增加量的量级约为 10^{-4} 。同时,衍射损耗及增益光阑均受激光模斑改变量的影响,如果衍射损耗及增益光阑的总调制作用比锁模自启动阈值大,那么该激光器可以自启动。根据文献^[29]的自启动条件估算出 $\text{Pr}^{3+}:\text{GdLiF}_4$ 晶体在可见波段自锁模脉冲激光实验自启动阈值的量级约为 10^{-6} ,由此可见, $\text{Pr}^{3+}:\text{GdLiF}_4$ 晶体衍射损耗及增益光阑产生的总调制作用比 $\text{Pr}^{3+}:\text{GdLiF}_4$ 晶体在可见波段自锁模脉冲激光实验自启动阈值要高两个数量级,说明该实验可实现自启动。采用两个腔镜平凹腔为谐振腔,通过对谐振腔及晶体进行调节获得波长分别为 522, 607, 639, 720 nm 的超快可见脉冲激光输出,其锁模脉冲波形分别如图 2(a) 所示,其脉冲宽度为 53~74 ps。所用的两个腔镜平凹腔的优化腔长均为 50 mm,对应的锁模重复频率约为 3 GHz,锁模脉冲频谱如图 2(b) 所示。该实验是首次采用 LD 抽运方式实现可见波段锁模脉冲输出,并将自锁模研究扩展至可见波段,实现了可见波段吉赫兹超快脉冲激光输出,在获得超快脉冲激光输出方面具有一定的参考价值。

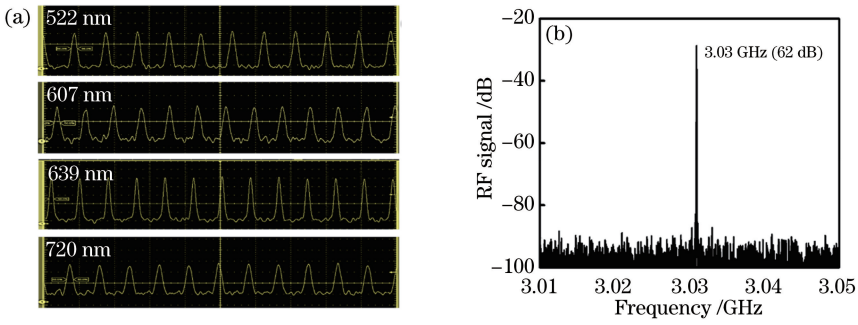


图 2 $\text{Pr}^{3+}:\text{GdLiF}_4$ 在可见波段的高重复频率自锁模脉冲激光表征。(a)不同波长处高重复频率脉冲串;(b)锁模脉冲频谱^[25]

Fig. 2 Characterization of high repetition rate $\text{Pr}^{3+}:\text{GdLiF}_4$ self-mode-locked pulsed laser in visible range.

(a) High repetition rate pulse trains at different wavelengths; (b) mode-locked pulse spectrum^[25]

4 基于可饱和吸收体的超快锁模脉冲激光

获得锁模激光的重要元件为锁模光调制器件,目前近红外波段锁模技术较为成熟,受抽运源及可见波段锁模光调制器件的限制,可见波段锁模脉冲技术研究较少。因此,探索一套适用于可见波段的锁模光调制器件筛选准则以服务于可见波段超快脉冲激光输出是研究的热点。基于锁模激光速率方程及 Hönninger 等^[30-32]的经验,本课题组推导出一种更为简单方便的判断准则用于选择锁模光调制器件及激光谐振腔设计,具体推导过程见文献[33]。该判断准则可表示为

$$F_{\text{sat},A} \Delta R < \frac{(PT_R)^2 \times m\sigma_L \lambda}{hc \times \pi\omega_{\text{eff},L}^2 \times \pi\omega_{\text{eff},A}^2}, \quad (1)$$

式中: P 为腔内激光平均功率; $F_{\text{sat},A}$ 为光调制器件的饱和能量密度; $\omega_{\text{eff},L}$ 为激光增益介质内的有效光斑半径; $\omega_{\text{eff},A}$ 为光调制器件上的有效光斑半径; T_R 为腔内往返时间; σ_L 为激光增益介质的发射截面; ΔR 为光调制器件的调制深度,表征光调制器件对强脉冲光的漂白能力; h 为普朗克常数; c 为光速; m 为常数。当谐振腔为环形腔时, $m=1$;当谐振腔为简单驻波腔时, $m=2$ 。在(1)式中, $F_{\text{sat},A} \Delta R$ 表示锁模光调制器件独特的非线性光学吸收特性,包括饱和能量密度 $F_{\text{sat},A}$ 和调制深度 ΔR ;而 $\frac{(PT_R)^2 \times m\sigma_L \lambda}{hc \times \pi\omega_{\text{eff},L}^2 \times \pi\omega_{\text{eff},A}^2}$ 是激光增益材料和激光腔的参数。该方程有助于更好地理解锁模器与激光设计的关系,从而获得稳定的连续锁模激光输出。由(1)式可知,通过合理的设计使得锁模调制器件具有良好的非线性饱和吸收特性是获得连续稳定锁模的一种新方法,而新兴二维或低维材料非线性光学性质的可控性及可调节性又为该方法提供了便利。

对于可见激光晶体而言,目前研究较多的是掺 Pr^{3+} 激光晶体,激光增益介质在可见波段的发射截面 σ_L 约为 10^{-20} cm^2 ^[6],锁模谐振腔长一般为 1.5 m,对应的往返时间 T_R 约为 10 ns^[34-35]。根据 ABCD 矩阵计算, $\omega_{\text{eff},L}$ 约为 $50 \mu\text{m}$,而光调制器件上的 $\omega_{\text{eff},A}$ 约为 $30 \mu\text{m}$ ^[35-36]。假设锁模阈值较低(1 mW,输出耦合器的透射率为 0.1%)时即可获得稳定连续锁模,则 $\frac{(PT_R)^2 \times m\sigma_L \lambda}{hc \times \pi\omega_{\text{eff},L}^2 \times \pi\omega_{\text{eff},A}^2} = 2 \text{ nJ/cm}^2$ 。这意味着,如果想要获得一个阈值较低的连续锁模激光,需要选择锁模光调制器件的 $F_{\text{sat},A} \times \Delta R$ 小于 2 nJ/cm^2 。基于超快激光的基本理论和非线性吸收光学特性,超快可见激光器的饱和吸收器必须在可见范围内具有适当的非线性饱和和吸收特性,且光载流子复合时间短,应小于激光腔内的往返时间 T_R (约 10 ns)。因此,可见范围内的锁模调制器件筛选准则可归纳为:1)锁模光调制器件具有与可见波段相对应的带隙;2)锁模光调制器件的光生载流子复合时间小于 10 ns;3)锁模光调制器件的 $F_{\text{sat},A} \times \Delta R$ 小于 2 nJ/cm^2 。

4.1 基于传统光调制器件的可见超快锁模脉冲激光

目前,常用的传统光调制器件主要有 Cr:YAG 和 SESAM,两者均被应用于可见波段锁模激光实验,其中 Cr:YAG 于 2013 年被用于 $\text{Pr}^{3+}:\text{YLiF}_4$ 锁模脉冲实验中^[37]。Abe 等^[37]在实验中仅获得了调 Q 脉冲激光输出,由本课题组提出的可见波段筛选准则可知,该结果是必然的。2014 年, Kariyama 等^[38]利用抽运探测技术测试 Cr^{4+} 在波长为 640 nm 处的恢复时间,其结果获得了两个恢复时间,其中较长的恢复时间为 $5.6 \mu\text{s}$,较短的为 81.6 ns,而较长的恢复时间和锁模的自启动有关,较短的恢复时间与超快脉冲的产生和维持有关。根据本课题组提出的可见波段光调制器件筛选准则的第 2) 条,一般要

求粒子复合时间小于 10 ns,因此 Cr:YAG 不适合作为可见波段的锁模光调制器件来实现稳定连续锁模激光输出。

1992 年, Keller 等^[3]在腔内引入反共振的法布里-珀罗可饱和吸收体实现了脉冲宽度为 3.3 ps 的自启动被动锁模激光输出。该可饱和吸收体也称为 SESAM,目前 SESAM 已经广泛用于近红外波段以实现调 Q 及锁模脉冲激光输出^[39],其在可见波段超快激光的研究也有所报道^[40]。2014 年, Gaponenko 等^[40]将 SESAM 作为可饱和吸收体、波长为 480 nm 的腔内倍频 InGaAs 片状半导体激光器(2 ω -OPSL)为抽运源,首次实现 Pr³⁺:YLiF₄ 晶体在可见波段被动锁模激光输出,并获得脉冲宽度为 18 ps、重复频率为 85.55 MHz、平均输出功率为 16 mW、波长为 639.5 nm 的红光超短脉冲激光输出,所获得的脉冲激光半峰全宽(FWHM)约

为 0.09 nm。该实验证实了掺 Pr³⁺ 激光晶体通过锁模技术实现超短脉冲可见激光输出的可行性。随着蓝光 LD 抽运源的发展,以 LD 为抽运源, Pr³⁺:YLiF₄ 激光晶体为增益介质, SESAM 为光调制器件,测得的锁模激光光谱宽度如图 3 所示,其中 0.1 nm 的光谱宽度应对应几个皮秒的脉冲宽度,但受限于实验仪器,该实验仅测得脉冲宽度为 45 ps 的锁模脉冲激光输出^[19]。SESAM 具有稳定性高、使用方便等特点,以 LD 为抽运源, SESAM 为锁模光调制器件的可见波段超快锁模激光实验还有待进一步优化,以获得稳定的超短脉冲激光输出,但 SESAM 也存在调制深度及响应波长有限的问题,此外响应波长在可见波段的 SESAM 并非常规商业化产品,因此发展新型可见波段光调制器件,丰富可见锁模调制器件是该领域的研究热点之一。

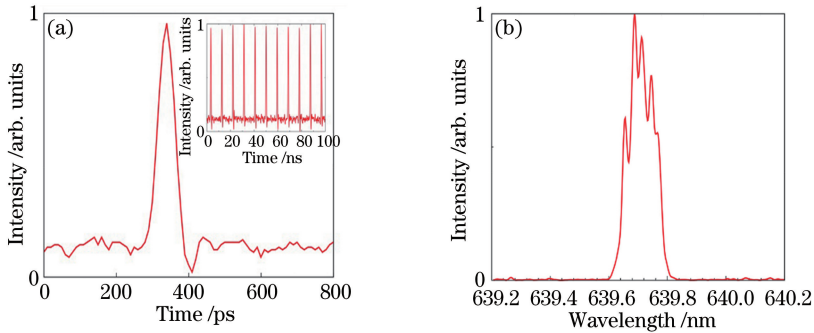


图 3 以 SESAM 为饱和吸收体的可见波段锁模。(a) LD 抽运的单脉冲(插图:脉冲串);(b) LD 抽运的激光光谱^[19]
Fig. 3 Mode-locking in visible range with SESAM as saturable absorber. (a) Single pulse trace with LD pumping (inset: pulse train); (b) laser spectrum with LD pumping

4.2 基于新型低维材料的可见超快锁模脉冲激光

新型低维材料因其较强的非线性光学响应、超快的载流子恢复时间及较高的载流子迁移率而成为新一代具有较大潜能的光电材料^[41-42]。随着研究人员对材料光电性质的不断探索,该类材料已广泛应用于 1, 1.5, 2 μ m 等近红外波段,实现调 Q 脉冲及锁模超快脉冲激光输出。在光学材料中,半导体的带隙决定了其潜在的应用范围。零带隙的石墨烯在超宽光谱范围内具有优异的性能,而一些层状二维半导体材料通过范德华力相互作用具有一定范围的带隙,且其带隙随着层数的变化而变化,这类材料可在一定波长范围内表现出优异的光电性质,比如单层 MoS₂ 具有直接带隙结构,其带隙宽度为 1.8 eV,而多层 MoS₂ 具有间接带隙结构,其带隙宽度为 0.86~1.29 eV^[43],而黑磷(BP)材料具有间接带隙结构,其带隙宽度为 0.3~2 eV。这些材料均存在可

见波段的本征吸收^[44],具有成为可见波段光调制器件的潜力。

低维材料作为光调制器件应用于激光腔时,一般有 2 种形式的全固态脉冲激光和 6 个形式的全光纤脉冲激光^[35,45-47]。近期,新型低维材料开始作为锁模光调制器件用于可见波段锁模,并实现了超快脉冲激光输出。不过,到目前为止,还未见可见波段全光纤锁模脉冲激光器的研究报道,这也是可见超快脉冲激光研究中值得关注的方向之一。

1) 石墨烯

石墨烯是由碳原子构成的单层片状二维材料,具有零带隙结构,表明该材料可能在从紫外到远红外的超宽光谱区具有优异的非线性光学响应特性^[41]。其载流子-载流子散射衰减时间为 70~120 fs,其载流子-声子散射衰减时间为 0.4~1.7 ps^[48],前者和超快脉冲激光的产生有关,后者和

锁模激光的自启动有关。石墨烯以饱和强度、超短的恢复时间、可调的调制深度和超宽的光学响应范围等优点成为一种新型的潜在饱和吸收材料。以石墨烯为光调制器件已获得稳定的近红外锁模脉冲激光输出^[49]，以石墨烯为光调制器件的可见波段超快脉冲研究也开始受到研究人员的关注。

本课题组以商用光学级石英玻璃片为基底，采用化学气相沉积法制备了单层石墨烯，以该石墨烯薄膜为透射式光调制器件， $\text{Pr}^{3+}:\text{LuLiF}_4$ 晶体为激光增益介质，首次报道了以石墨烯为光调制器件的可见波段超快锁模脉冲激光^[50]。该实验采用常见

的 X 型谐振腔设计，其谐振腔如图 4(a) 所示。当最大平均输出功率约为 20 mW 时，获得了波长为 639 nm 的连续锁模激光输出，其锁模脉冲序列在 1 ms/div 和 20 ns/div 两个不同时间尺度上的波形如图 4(b) 所示，可以看出，锁模脉冲的稳定性较高，且调 Q 锁模已被完全抑制。实验获得的最小脉冲宽度经过高斯拟合后约为 45 ps，如图 4(c) 所示。近期，本课题组采用相同的制备方法，将石墨烯镀在平面全反射镜上制备成反射式光调制器件，获得了波长为 604 nm 的橙色锁模脉冲激光输出，其脉冲宽度为 113 ps，平均输出功率为 80 mW。

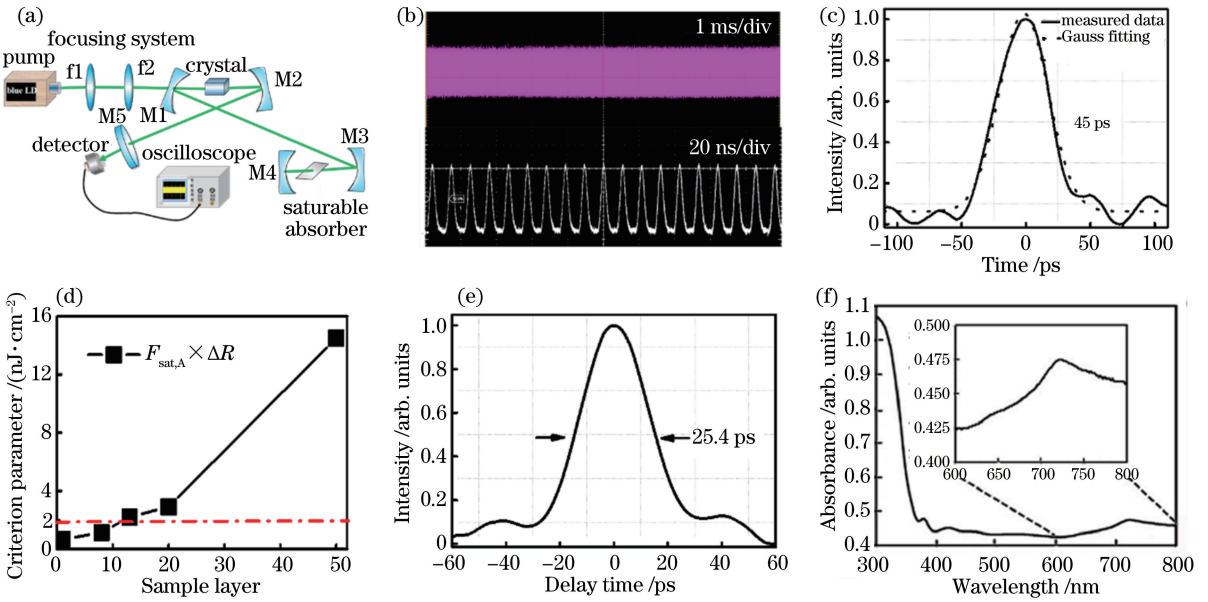


图 4 新型低维材料在可见波段的锁模应用。(a)常用的锁模激光谐振腔;(b)锁模脉冲串^[50];(c)以单层石墨烯为饱和吸收体的锁模单脉冲^[50];(d)不同层数 MoS₂ 样品的非线性可饱和吸收性质及筛选^[52];(e)以 1~3 层 MoS₂ 为可饱和吸收体的锁模单脉冲^[52];(f) NiO 纳米片在可见波段的线性吸收光谱^[60]

Fig. 4 Mode-locking application of novel low-dimensional materials in visible range. (a) Common mode-locked laser cavity; (b) mode-locked pulse train^[50]; (c) mode-locked single pulse trace with monolayer graphene as saturable absorber^[50]; (d) nonlinear saturable absorption properties and selection criterion of different layers of MoS₂ samples^[52]; (e) mode-locked single pulse trace with 1-3 layers of MoS₂ as saturable absorber^[52]; (f) linear absorption spectrum of NiO nanosheet in visible range^[60]

2) MoS₂

MoS₂ 是一种典型的二维层状材料，通过对样品层数的调整可有效调控其非线性吸收光学性质。目前，MoS₂ 材料已用于近红外波段实现锁模脉冲激光输出，揭示了二维材料在超快激光应用中的良好前景^[51]。基于 MoS₂ 独特的带隙结构，单层 MoS₂ 的固有特性决定了其在可见光脉冲激光器中具有良好的饱和吸收性能。根据锁模光调制器件的筛选准则，可以操控材料使其饱和能量密度和调制深度的乘积小于 2 nJ/cm²，以实现可见锁模激光输

出。基于此，本课题组通过脉冲激光沉积法制备不同层数(50、20、13、8 和 1~3 层)的 MoS₂ 样品并测试其非线性可饱和吸收性质，计算发现 13 层样品的 $F_{\text{sat,A}} \times \Delta R$ 约为 2.2 nJ/cm²，而 8 层样品的 $F_{\text{sat,A}} \times \Delta R$ 小于 2.2 nJ/cm²，5 个样品的计算结果如图 4(d) 所示，因此推测层数小于 10 的 MoS₂ 样品作为可见波段光调制器件，可实现连续锁模脉冲激光输出。以 8 层、1~3 层 MoS₂ 样品为锁模光调制器件，采用如图 4(a) 所示的 X 型激光腔，在 522~639 nm 波长范围内实现了 LD 抽运全固态锁模脉

冲激光输出,最小脉冲宽度为 25 ps,如图 4(e)所示。这一思路可以为超快光子学设计准则的建立提供积极的证据,为材料设计提供参考^[52]。

目前,低维材料在可见波段超快锁模脉冲激光的研究还仅限于石墨烯和不同层数的 MoS₂ 材料,其他新兴材料在可见波段超快脉冲激光的研究鲜有报道,基于所提出的锁模调制器件筛选准则,对其他材料进行预判。就黑磷层状材料而言,其饱和能量密度 $F_{\text{sat},A}$ 与相应的调制深度 ΔR 的乘积在 mJ/cm^2 量级,远远大于需要的 $2 \text{ nJ}/\text{cm}^2$ ^[53-54]。这表明,黑磷材料不适合作为锁模调制器件来实现可见波段锁模脉冲激光输出,不过后续通过探索样品形貌、厚度及缺陷与非线性光学性质之间的关系,通过材料设计获得 $F_{\text{sat},A} \times \Delta R < 2 \text{ nJ}/\text{cm}^2$ 的黑磷材料以用于可见超快脉冲激光也很值得期待。较厚的 Bi₂Se₃ 拓扑绝缘体材料的饱和能量密度 $F_{\text{sat},A}$ 与相应的调制深度 ΔR 的乘积在 $1 \text{ mJ}/\text{cm}^2$ 量级,不适合产生连续锁模脉冲激光,但由于拓扑绝缘体材料的非线性饱和吸收特性依赖于材料的厚度,因此更薄的拓扑绝缘体材料有可能作为可见波段锁模调制器件来实现超快脉冲激光输出^[55]。同样地,通过设计和调整量子点的尺寸以获得需要的可饱和吸收性质,进而应用于可见超快脉冲激光器。总之,窄带隙的低维半导体材料作为可见波段光调制器件的研究较少,通过设计和调控材料的形貌和厚度等参数获得所需的非线性可饱和吸收性质会逐渐成为未来可见波段锁模光调制器件的发展趋势。不管是近红外波段还是可见波段,低维材料作为调制器件实现超快脉冲激光输出还处于实验室阶段,由于低维材料在制备过程中存在容易出现缺陷、难以精确控制层数以及稳定性差的问题,其在商业化应用的推广上还有很长的路要走,不过随着制备技术的提高以及科研的深入,低维材料仍具备巨大的应用潜力。

3) NiO 纳米片

NiO 纳米片是一种常见的 3-d 金属氧化物光电材料,其带隙宽度为 3~4 eV。图 4(f)所示的最新研究结果显示,该材料在可见波段存在吸收,且该材料也具有可见波段的非线性可饱和吸收响应特性^[56-57]。NiO 的非线性可饱和吸收特性依赖于 ³A_{2g}(F)能级到¹E_g(D)能级的带内跃迁,这与石墨烯、MoS₂ 等材料的带间跃迁产生的非线性响应不同^[58]。Volkov 等^[59]研究了 NiO 纳米团簇的光学响应和超快动力学,在波长为 584 nm 光的激发下,测试得到的¹T_{2g}和¹E_g带内 d-d 跃迁的载流子复合

时间分别为 30~70 ps 和 300~500 ps,其中 30~70 ps 的载流子复合时间是由纯非辐射跃迁复合中心产生的。其带内跃迁存在可见波段吸收的同时具有小于 10 ns 的恢复时间,也符合提出的筛选准则的前提条件,具有用于可见波段锁模脉冲的应用潜力。本课题组制备了厚度为 280 nm 的 NiO 纳米片并测试了其非线性可饱和吸收性质。结果发现,该 NiO 纳米片的 $F_{\text{sat},A} \times \Delta R \approx 1 \text{ nJ}/\text{cm}^2$,满足筛选准则,可见该材料可作为可见波段锁模调制器件,基于此,本课题组以 280 nm 厚度的 NiO 纳米片为光体质器件,Pr³⁺:LuLiF₄激光晶体为增益介质获得了脉冲宽度为 30 ps、重复频率为 109.8 MHz 的可见锁模脉冲激光输出^[60]。这一结果为宽带隙半导体材料在可见光波段的应用开辟道路,也可能为超快光子学开辟新的道路。

将现阶段可见波段超快脉冲激光研究的相关成果汇总在表 1,从表 1 可以看出,可见波段超快脉冲激光的发展还比较有限,目前鲜有关于可见波段 LD 抽运的飞秒量级超快激光输出的报道,此外,全光纤超快锁模脉冲也鲜有报道。寻求更多合适的激光增益材料及筛选合适的光调制器件并获得超短脉冲激光输出仍然是该领域的研究热点,基于本课题组提出的筛选准则,有计划、有目的地选择合适的可见波段光调制器件并筛选出具有成本低、损伤阈值高、制备简单、可实用化的光调制器件是研究的最终目标。

5 结束语

目前,可见波段连续及调 Q 脉冲激光已经取得很大的进展,但超快脉冲激光研究的受关注度较低,仍然是现在及将来很长一段时间的研究热点。目前,关于激光技术的研究主要集中在全固态超快锁模激光器,而全光纤超快锁模激光器的研究鲜有报道,因此可见波段的超快光纤激光器的发展应受到更广泛的关注。而就增益材料而言,平滑的光谱有利于锁模脉冲激光的产生,而宽的发射光谱有利于超短脉冲的激光产生,因此在可见波段范围具有平滑而宽的发射光谱的激光增益介质有利于超快锁模脉冲激光的产生。此外,为获得结构紧凑的小型化超快可见激光器,集成式脉冲激光器可能是面向市场应用的主要研究方向,比如,可以将可饱和吸收体与激光腔镜或色散补偿装置集成,使激光器结构紧凑,进而促进超快可见脉冲激光器的商业化进程。另外,近年来关于波导激光器的报道逐渐增多,基于新

表 1 可见波段超快脉冲总结

Table 1 Summary of ultrafast pulse lasers in visible range

Modulation	Gain material	Pumping way	Saturable absorber	Pulse width /ps	Repetition rate /MHz	Wavelength / nm	Year	Ref.
Kerr-lens mode-locking	Pr ³⁺ :YLiF ₄	Argon-ion laser		8	100	639	1994	[14]
				9.7	100	607	1995	[15]
				8.5	125	639	1995	[15]
				15	70	607	1996	[16]
				0.4		613	1996	[17]
	Pr ³⁺ :GdLiF ₄	LD		400	75	639	2016	[19]
				72	2800	522	2016	[25]
				69	3100	607	2016	[25]
				53	3100	639	2016	[25]
				74	3000	720	2016	[25]
Passive mode-locking	Pr ³⁺ :YLiF ₄	2 ω -OPSL	SESAM	18	85.55	639	2014	[39]
			LD	15	107.5	639	2014	[38]
	Pr ³⁺ :YLiF ₄	LD	SESAM	45	108	639	2016	[19]
			MoS ₂	46	101.1	522	2017	[52]
	Pr ³⁺ :GdLiF ₄	LD		30	90.2	607	2017	[52]
				25	94.7	639	2017	[52]
	Pr ³⁺ :LuLiF ₄	LD	Graphene	45	102	639	2018	[50]
	Pr ³⁺ :GdLiF ₄	LD	NiO	30.2	109.8	639	2018	[60]

型可饱和吸收材料的近红外波段锁模波导激光器也受到广泛的关注,波导激光器也是微型化激光器发展的重要方向,因此,发展可见波段超快波导激光器可能也是未来的研究热点。作为超快脉冲激光研究的重要组成部分,可见波段锁模光调制器件的研究是促进可见波段超快脉冲激光器发展的重要因素。对于光调制器件的选择,根据所提出的锁模光调制器件筛选准则可知,实现超快脉冲激光输出需要调制深度及饱和能量密度较小的材料,也要求材料具有较快的载流子恢复时间。此外,为了获得更好的脉冲输出,光调制器件应该具有质量好、导热系数大、电子迁移率高且制备简单、成本低等优点。综上所述,从克尔透镜锁模、高重复频率吉赫兹自锁模及基于可饱和吸收体的锁模出发,综述了可见波段超快脉冲激光研究现状,通过对可见波段脉冲激光器的回顾,并结合可见波段光调制器件筛选准则,提出对可见激光发展趋势的展望。

参 考 文 献

[1] Wheeland R G. Clinical uses of lasers in dermatology [J]. Lasers in Surgery and Medicine, 1995, 16(1): 2-23.
 [2] Shapiro M J, Chow C C, Karth P A, et al. Effects of green diode laser in the treatment of pediatric coats disease [J]. American Journal of Ophthalmology,

2011, 151(4): 725-731.

[3] Keller U, Miller D A B, Boyd G D, et al. Solid-state low-loss intracavity saturable absorber for Nd:YLF lasers: an antiresonant semiconductor Fabry-Perot saturable absorber[J]. Optics Letters, 1992, 17(7): 505-507.
 [4] Chellappan K V, Erden E, Urey H. Laser-based displays[J]. Applied Optics, 2010, 49(25): F79-F98.
 [5] Hedges M P, Longdell J J, Li Y M, et al. Efficient quantum memory for light [J]. Nature, 2010, 465(7301): 1052-1056.
 [6] Kränkel C, Marzahl D T, Moglia F, et al. Out of the blue: semiconductor laser pumped visible rare-earth doped lasers [J]. Laser & Photonics Reviews, 2016, 10(4): 548-568.
 [7] Keller U. Recent developments in compact ultrafast lasers [J]. Nature, 2003, 424(6950): 831.
 [8] Zhang Y X, Wang S X, Yu H H, et al. Atomic-layer molybdenum sulfide optical modulator for visible coherent light [J]. Scientific Reports, 2015, 5: 11342.
 [9] Wu D D, Cai Z P, Zhong Y L, et al. Compact passive Q-switching Pr³⁺-doped ZBLAN fiber laser with black phosphorus-based saturable absorber [J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2017, 23(1): 0900106.
 [10] Xu B, Luo S Y, Yan X G, et al. CdTe/CdS

- quantum dots: effective saturable absorber for visible lasers [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2017, 23(5): 1-7.
- [11] Luo S Y, Yan X G, Xu B, *et al.* Few-layer Bi₂Se₃-based passively Q-switched Pr:YLF visible lasers[J]. *Optics Communications*, 2018, 406: 61-65.
- [12] Wang S X, Zhang Y X, Xing J, *et al.* Nonlinear optical response of Au nanorods for broadband pulse modulation in bulk visible lasers[J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 107(16): 161103.
- [13] Duling I N. Compact sources of ultrashort pulses [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 1995.
- [14] Ruan S, French P M W, Chai B H T, *et al.* Kerr lens modelocked solid state laser in the red (639 nm) [J]. *Electronics Letters*, 1994, 30(19): 1601-1602.
- [15] Ruan S, Chai B H T, Sutherland J M, *et al.* Kerr-lens mode-locked visible transitions of a Pr:YLF laser [J]. *Optics Letters*, 1995, 20(9): 1041-1043.
- [16] Tong Y, Shestakov A, Chai B, *et al.* Self-starting Kerr-lens mode-locked femtosecond Cr⁴⁺:YAG and picosecond Pr³⁺:YLF solid-state lasers[J]. *Optics Letters*, 1996, 21(9): 644-646.
- [17] Sutherland J M, Chai B H T, French P M W, *et al.* Visible continuous-wave laser transitions in Pr³⁺:YLF and femtosecond pulse generation [J]. *Optics Letters*, 1996, 21(11): 797-799.
- [18] Esterowitz L, Bartoli F J, Allen R E, *et al.* Energy levels and line intensities of Pr³⁺ in LiYF₄ [J]. *Physical Review B*, 1979, 19(12): 6442.
- [19] Iijima K, Kariyama R, Tanaka H, *et al.* Pr³⁺:YLF mode-locked laser at 640 nm directly pumped by InGaN-diode lasers [J]. *Applied Optics*, 2016, 55(28): 7782-7787.
- [20] Hu H, Mulvad H C H, Peucheret C, *et al.* 10 GHz pulse source for 640 Gbit/s OTDM based on phase modulator and self-phase modulation [J]. *Optics Express*, 2011, 19(26): B343-B349.
- [21] Gerginov V, Tanner C E, Diddams S A, *et al.* High-resolution spectroscopy with a femtosecond laser frequency comb [J]. *Optics Letters*, 2005, 30(13): 1734-1736.
- [22] Sun Y, Pan J Q, Zhao L J, *et al.* All-optical clock recovery for 20 Gb/s using an amplified feedback DFB laser [J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2010, 28(17): 2521-2525.
- [23] Zhuang W Z, Chang M T, Liang H C, *et al.* High-power high-repetition-rate subpicosecond monolithic Yb:KGW laser with self-mode locking [J]. *Optics Letters*, 2013, 38(14): 2596-2599.
- [24] Liang H, Chen R C, Huang Y, *et al.* Compact efficient multi-GHz Kerr-lens mode-locked diode-pumped Nd:YVO₄ laser [J]. *Optics Express*, 2008, 16(25): 21149-21154.
- [25] Zhang Y X, Yu H H, Zhang H J, *et al.* Laser-diode pumped self-mode-locked praseodymium visible lasers with multi-gigahertz repetition rate [J]. *Optics Letters*, 2016, 41(12): 2692-2695.
- [26] Xie G Q, Tang D Y, Zhao L M, *et al.* High-power self-mode-locked Yb:Y₂O₃ ceramic laser [J]. *Optics Letters*, 2007, 32(18): 2741-2743.
- [27] Liu K X, Flood C J, Walker D R, *et al.* Kerr lens mode locking of a diode-pumped Nd:YAG laser [J]. *Optics Letters*, 1992, 17(19): 1361-1363.
- [28] Piché M. Beam reshaping and self-mode-locking in nonlinear laser resonators [J]. *Optics Communications*, 1991, 86(2): 156-160.
- [29] Cerullo G, de Silvestri S, Magni V. Self-starting Kerr-lens mode locking of a Ti:sapphire laser [J]. *Optics Letters*, 1994, 19(14): 1040-1042.
- [30] Hönninger C, Paschotta R, Morier-Genoud F, *et al.* Q-switching stability limits of continuous-wave passive mode locking [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1999, 16(1): 46-56.
- [31] Haus H A. Theory of mode locking with a fast saturable absorber [J]. *Journal of Applied Physics*, 1975, 46(7): 3049-3058.
- [32] Haus H. Parameter ranges for CW passive mode locking [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1976, 12(3): 169-176.
- [33] Zhang H J, Zhang Y X, Yu H H, *et al.* Pr³⁺-doped laser crystals and their all-solid-state pulse visible lasers [J]. *Journal of the Chinese Ceramic Society*, 2017, 45(10): 1392-1401.
张怀金, 张玉霞, 于浩海, 等. 掺镨激光晶体及其全固态脉冲可见激光研究 [J]. *硅酸盐学报*, 2017, 45(10): 1392-1401.
- [34] Tan W D, Tang D Y, Xu C W, *et al.* Evidence of dissipative solitons in Yb³⁺:CaYAlO₄ [J]. *Optics Express*, 2011, 19(19): -18500.
- [35] Ma J, Huang H T, Ning K J, *et al.* Generation of 30 fs pulses from a diode-pumped graphene mode-locked Yb:CaYAlO₄ laser [J]. *Optics Letters*, 2016, 41(5): 890-893.
- [36] Cornacchia F, di Lieto A, Tonelli M, *et al.* Efficient visible laser emission of GaN laser diode pumped Pr-doped fluoride scheelite crystals [J]. *Optics Express*, 2008, 16(20): 15932-15941.
- [37] Abe R, Kojou J, Masuda K, *et al.* Cr⁴⁺-doped Y₃Al₅O₁₂ as a saturable absorber for a Q-switched and mode-locked 639-nm Pr³⁺-doped LiYF₄ laser [J]. *Applied Physics Express*, 2013, 6(3): 032703.

- [38] Kariyama R, Tanaka H, Kojou J, *et al.* Passive Q-switching of visible Pr³⁺:LiYF₄ laser with Cr⁴⁺:YAG saturable absorber and intracavity second harmonic generation at DUV [C]. *Advanced Solid State Lasers*, 2014.
- [39] Li B, Jia T, Yang Y, *et al.* Diode-end-pumped passively mode-locked Nd:GAGG laser at 1.3 μm with SESAM [J]. *Laser Physics Letters*, 2012, 9(8): 557-560.
- [40] Gaponenko M, Metz P W, Härkönen A, *et al.* SESAM mode-locked red praseodymium laser [J]. *Optics Letters*, 2014, 39(24): 6939-6941.
- [41] Bao Q L, Zhang H, Wang Y, *et al.* Atomic-layer graphene as a saturable absorber for ultrafast pulsed lasers[J]. *Advanced Functional Materials*, 2009, 19(19): 3077-3083.
- [42] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S, *et al.* Electric field effect in atomically thin carbon films [J]. *Science*, 2004, 306(5696): 666-669.
- [43] Splendiani A, Sun L, Zhang Y B, *et al.* Emerging photoluminescence in monolayer MoS₂ [J]. *Nano Letters*, 2010, 10(4): 1271-1275.
- [44] Qiao J S, Kong X H, Hu Z X, *et al.* High-mobility transport anisotropy and linear dichroism in few-layer black phosphorus [J]. *Nature Communications*, 2014, 5: 4475.
- [45] Wang Y C, Chen W D, Mero M, *et al.* Sub-100 fs Tm:MgWO₄ laser at 2017 nm mode locked by a graphene saturable absorber [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(16): 3076-3079.
- [46] Martinez A, Sun Z P. Nanotube and graphene saturable absorbers for fibre lasers [J]. *Nature Photonics*, 2013, 7(11): 842-845.
- [47] Luo Z Q, Wu D D, Xu B, *et al.* Two-dimensional material-based saturable absorbers: towards compact visible-wavelength all-fiber pulsed lasers [J]. *Nanoscale*, 2016, 8(2): 1066-1072.
- [48] George P A, Strait J, Dawlaty J, *et al.* Ultrafast optical-pump terahertz-probe spectroscopy of the carrier relaxation and recombination dynamics in epitaxial graphene[J]. *Nano Letters*, 2008, 8(12): 4248-4251.
- [49] Bao Q L, Zhang H, Ni Z H, *et al.* Monolayer graphene as a saturable absorber in a mode-locked laser[J]. *Nano Research*, 2011, 4(3): 297-307.
- [50] Zhang Y X, Lu D Z, Yu H H, *et al.* Low-dimensional saturable absorbers in the visible spectral region[J]. *Advanced Optical Materials*, 2019, 7(1): 1800886.
- [51] Woodward R I, Howe R C T, Hu G, *et al.* Few-layer MoS₂ saturable absorbers for short-pulse laser technology: current status and future perspectives [J]. *Photonics Research*, 2015, 3(2): A30.
- [52] Zhang Y X, Yu H H, Zhang R, *et al.* Broadband atomic-layer MoS₂ optical modulators for ultrafast pulse generations in the visible range [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(3): 547-550.
- [53] Lu S B, Miao L L, Guo Z N, *et al.* Broadband nonlinear optical response in multi-layer black phosphorus: an emerging infrared and mid-infrared optical material[J]. *Optics Express*, 2015, 23(9): 11183-11194.
- [54] Hanlon D, Backes C, Doherty E, *et al.* Liquid exfoliation of solvent-stabilized few-layer black phosphorus for applications beyond electronics [J]. *Nature Communications*, 2015, 6: 8563.
- [55] Luo Z Q, Huang Y Z, Weng J, *et al.* 1.06 nm Q-switched ytterbium-doped fiber laser using few-layer topological insulator Bi₂Te₃ as a saturable absorber [J]. *Optics Express*, 2013, 21(24): 29516-29522.
- [56] Zhang Z Y, Shao C L, Li X H, *et al.* Electrospun nanofibers of p-type NiO/n-type ZnO heterojunctions with enhanced photocatalytic activity [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2010, 2(10): 2915-2923.
- [57] Anisimov V I, Solovyev I V, Korotin M A, *et al.* Density-functional theory and NiO photoemission spectra [J]. *Physical Review B*, 1993, 48(23): 16929-16934.
- [58] Newman R, Chrenko R M. Optical properties of nickel oxide [J]. *Physical Review*, 1959, 114(6): 1507-1513.
- [59] Volkov V V, Wang Z L, Zou B S. Carrier recombination in clusters of NiO [J]. *Chemical Physics Letters*, 2001, 337(1/2/3): 117-124.
- [60] Sun B, Zhang Y X, Zhang R, *et al.* Nonlinear optical response during the electron transition process originated from 3D spin-orbit splitting in NiO nanosheets[J]. *Optics Express*, 2018, 26(2): 1230-1236.