

基于反射式 MoS₂ 可饱和吸收体调 Q 锁模 Tm:LuAG 激光器

令维军^{1**}, 孙锐^{1,2}, 陈晨^{1,2}, 张亚妮^{2,3}, 康翠萍², 许强², 董忠^{1*}

¹天水师范学院激光技术研究所, 甘肃 天水 741001;

²宝鸡文理学院物理与光电技术学院, 陕西 宝鸡 721016;

³陕西科技大学文理学院, 陕西 西安 710021

摘要 采用反射式 MoS₂ 可饱和吸收体在 Tm:Lu₃Al₅O₁₂ 激光器中实现了被动调 Q 锁模(QML)运转。以可调谐掺钛蓝宝石激光器为抽运源,结合低阈值腔设计,选用透射率为 3% 的输出镜获得 525 mW 的出光阈值。当吸收抽运功率达到 1743 mW 时,激光器处于稳定的被动调 Q 锁模运行状态。当最大抽运功率达到 3.1 W 时,激光器被动调 Q 锁模输出功率为 306 mW,斜效率为 14.3%,中心波长为 2023 nm,对应的锁模脉冲序列的重复频率为 106.4 MHz,最大的单脉冲能量为 2.88 nJ,调制深度接近 100%。结果表明,反射式 MoS₂ 可饱和吸收体在 2 μm 波段激光锁模中具有良好的应用前景。

关键词 激光器; Tm:LuAG; MoS₂ 可饱和吸收体; 调 Q 锁模; 调制深度

中图分类号 TN248.1

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201946.0808002

Passively Q-Switched Mode-Locked Tm:LuAG Laser with Reflective MoS₂ Saturable Absorber

Ling Weijun^{1**}, Sun Rui^{1,2}, Chen Chen^{1,2}, Zhang Yani^{2,3},
Kang Cuiping², Xu Qiang², Dong Zhong^{1*}

¹Institute of Laser Technology, Tianshui Normal University, Tianshui, Gansu 741001, China;

²Institute of Physics and Optoelectronics Technology, Baoji University of Arts and Sciences,
Baoji, Shaanxi 721016, China;

³School of Arts and Sciences, Shaanxi University of Science & Technology, Xi'an, Shaanxi 710021, China

Abstract The passively Q-switched mode-locked (QML) operation of a Tm:Lu₃Al₅O₁₂ laser is experimentally demonstrated by employing the reflective MoS₂ as a saturable absorber mirror. An absorbed pump threshold of 525 mW with a 3% output mirror is achieved using a tunable Ti-doped sapphire laser as the pumping source and a low-threshold cavity design. Further, a stable QML operation state is obtained when the absorbed pump power is 1743 mW. When the maximum pump power is 3.1 W, the Q-switched mode-locked output power is 306 mW, the slope efficiency is 14.3%, the central wavelength is 2023 nm, the repetition rate is 106.4 MHz, and the maximum single pulse energy is 2.88 nJ. Furthermore, the modulation depth is observed to be close to 100%. The results show that the reflective MoS₂ saturable absorber has a potential application in 2 μm laser mode-locked.

Key words lasers; Tm:LuAG; MoS₂ saturable absorber; Q-switched mode-locked; modulation depth

OCIS codes 140.3580; 140.3380; 140.3540

收稿日期: 2018-12-27; 修回日期: 2019-01-26; 录用日期: 2019-02-15

基金项目: 国家自然科学基金(61564008, 11774257, 11647008, 11504416)、陕西省国际科技合作与交流项目(2018KW-016)、宝鸡市重大科技专项计划(2015CXNL-1-3)、天水市科技支撑计划自然科学基金项目(2018-FZJHK-2704)

* E-mail: dz0212@foxmail.com; ** E-mail: wjlingts@sina.com

1 引 言

处于 $2\ \mu\text{m}$ 波段的超快固体激光器具有较高的峰值功率和脉冲能量,在诸多领域发挥着重要作用^[1-4]。实现稳定的皮秒或飞秒量级的超短脉冲是激光技术领域关注的热点问题之一。通过在激光腔内引入可饱和吸收材料对激光器进行锁模来获得超短脉冲的激光输出是近年来该领域的热门研究方向之一。从目前已报道的结果来看,很多材料可应用于 $1\sim 3\ \mu\text{m}$ 的调 Q 锁模(QML)激光运转,如半导体可饱和吸收镜(SESAMs)、碳纳米管(CNTs)、石墨烯等。目前,主要从损伤阈值、恢复时间、饱和强度等方面来评估可饱和吸收体的性能。半导体可饱和吸收镜的使用范围相对较广,2018年 Zhao 等^[5]通过 SESAM 实现了 $\text{Tm, Ho:CALYO}(\text{Tm, Ho:CaYAlO}_4)$ 晶体 87 fs 的锁模运转。但 SESAM 存在制造工艺相对复杂、造价高昂等问题^[6]。二维材料石墨烯可以实现 $1\sim 2\ \mu\text{m}$ 波段的激光器锁模运转^[7-9],但石墨烯在 $2\ \mu\text{m}$ 波段的吸收效率较低,导致其对 $2\ \mu\text{m}$ 波段光的调制能力受限。碳纳米管常被用在 $1\sim 2\ \mu\text{m}$ 波段的光纤激光器中^[10-12],但是其在 $2\ \mu\text{m}$ 固体激光器中受限于腔内损伤阈值,效率相对较低^[13]。

近年来,过渡金属二硫化物(TMDCs)以其较高的损伤阈值、较大的调制深度、较宽的吸收带宽和较高的非线性效应受到人们的广泛关注。二硫化钼(MoS_2)是一种典型的金属二硫化物,其两层硫原子和中间的钼原子组成六方型结构^[14-15]。2014年, Zhang 等^[16]证明了 MoS_2 可以应用于激光锁模,并在 $1054\ \text{nm}$ 光纤激光器中实现了 800 ps 的锁模运转。2017年, Xia 等^[17]利用 MoS_2 在 $\text{Er:YAG}(\text{Er:Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12})$ 激光器中实现了中心波长为 $1.6\ \mu\text{m}$, 脉冲宽度为 $1.138\ \mu\text{s}$, 重复频率为 46.6 kHz 的被动调 Q 运转。2017年, Lin 等^[18]使用 MoS_2 在 Nd:YAG 晶体上实现了中心波长为 $964\ \text{nm}$, 脉冲宽度为 280 ns 的被动调 Q 运转。目前, MoS_2 的研究工作主要集中在 $1\ \mu\text{m}$ 波段附近,但是该材料在 $2\ \mu\text{m}$ 固体激光器锁模的研究鲜有报道,而反射式 MoS_2 比透射式 MoS_2 具有更高的损伤阈值,更适合应用于全固态激光器锁模运转。

通过提拉法生长的晶体 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (LuAG) 是一种性能优良的增益介质基质材料。由于 LuAG 与 YAG 同构,因此 LuAG 也拥有较高的导热系数^[19],此外, LuAG 还拥有较低的声子能量损耗以

及较大的吸收截面和发射截面。而掺杂 Tm^{3+} 离子的 Tm:LuAG 具有较高的斜效率和损伤阈值,以及较宽的调谐宽度,并且在其吸收光谱中,吸收峰广泛分布在 $400\sim 2000\ \text{nm}$ 波段内,其中四个主要的吸收峰分别位于 $682, 788, 1173, 1629\ \text{nm}$ ^[20]。2009年, Wu 等^[21]实现了 Tm:LuAG 在室温下的连续光(CW)运转。2012年, Chen 等^[22]通过声光开关实现了 Tm:LuAG 晶体 50 Hz 的调 Q 运转,脉冲宽度为 293 ns。2015年, Feng 等^[23]使用单壁碳纳米管实现了 Tm:LuAG 晶体脉冲宽度为 405 ns 的调 Q 运转。同年,该小组通过 SESAM 实现了 Tm:LuAG 晶体 38 ps 的锁模运转^[24]。综上所述,如何使用该晶体实现更加稳定、高效、易得的锁模激光,仍然有待进一步研究。

本文通过传统的 X 型腔,将本实验室搭建的可调谐钛宝石激光器作为抽运源,在 Tm:LuAG 晶体上通过反射式 MoS_2 实现了稳定的被动调 Q 锁模运转,输出光的中心波长为 $2023\ \text{nm}$,采用透射率为 3% 的输出镜时,最大的锁模输出功率为 306 mW,重复频率为 106.4 MHz,对应的单脉冲能量为 2.88 nJ,调制深度接近 100%,其运转已非常接近连续锁模。

2 反射式 MoS_2 可饱和吸收体材料的制备

实验采用垂直生长法制备所需的反射式 MoS_2 可饱和吸收体。1)首先,将玻璃片浸没在去离子水中,在超声清洗仪中对玻璃片超声清洗 10 min,再将清洗过的玻璃片浸没在乙醇溶液中超声清洗 10 min,确保去除玻璃片表面的附着物;然后,将超声清洗后的玻璃片置于双氧水与浓硫酸按比例配置的均匀混合液中静置,以获得亲水处理的玻璃片,再将亲水处理的玻璃片放入去离子水中浸泡 10 min,去除其表面残留的酸性液体;最后,将玻璃片取出,用氮气将表面的残留液体吹干。2)使用电子束蒸发镀膜机在玻璃片一面镀上银膜,以获得银镜。3)将 MoS_2 粉末加入水基溶液中,超声处理若干小时后获得均匀的 MoS_2 溶液,其质量浓度控制为 $1\ \text{mg/mL}$;直接将 MoS_2 溶液滴在亲水处理的银镜上,静置待溶液完全蒸发后, MoS_2 材料沉积在银镜上。至此,反射式 MoS_2 可饱和吸收体制备完成,所制得的样品如图 1 所示。

图 2 所示为 MoS_2 可饱和吸收体的拉曼光谱。 E_{2g}^1 (平面上)和 A_{1g} (平面外)为 MoS_2 的主要声子振

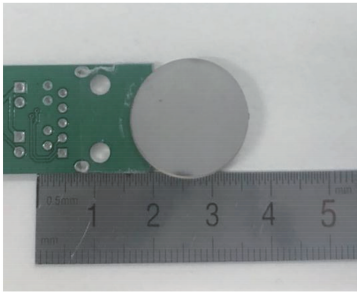


图 1 MoS₂ 可饱和吸收镜

Fig. 1 MoS₂ saturable absorber mirror

动模。随着 MoS₂ 厚度的变化,其主要的声子振动模 A_{1g} 和 E_{2g}¹ 也会分别出现蓝移和红移的现象。由图 2 可知,两个特征峰值分别位于 383.1 cm⁻¹ 和 401.7 cm⁻¹ 处,通过与标准样品的 MoS₂ 比较可以估算出该 MoS₂ 可饱和吸收体已经剥离出少层结构。

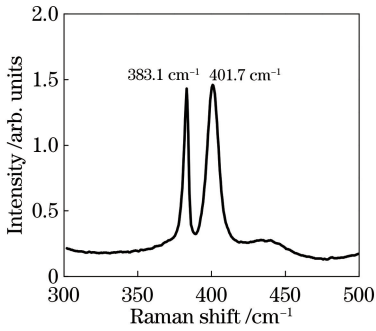


图 2 MoS₂ 拉曼光谱

Fig. 2 Raman spectrum of MoS₂

3 实验装置

Tm:LuAG 被动调 Q 锁模激光的实验装置如图 3 所示,这是一个典型的 X 型五镜腔结构。抽运源为可调谐的掺钛蓝宝石激光器,通过腔内双折射滤光片可将输出波长调谐到 794.2 nm,正好对应激光晶体的一个吸收峰,其最大输出功率为 3.1 W。激光晶体为 Tm:LuAG,以布儒斯特角对两个通光表面进行切割并抛光,晶体内铥离子(Tm³⁺)的掺杂浓度(原子数分数,下同)为 5%,尺寸为 3 mm×3 mm×5 mm。为了控制晶体运转时的热透镜效应,需要冷却激光晶体。实验中使用钢箔包裹激光晶体,将其夹持在特别设计的紫铜冷却夹具片内,在实验过程中采用恒温水冷系统对紫铜晶体夹具进行冷却,冷却水的温度维持在 12 ℃ 左右。M1、M2 为平面高反镜,对 770~1050 nm 波段的抽运激光的反射率大于 99.9%。聚焦透镜(L)的焦距 f 为 100 mm,对抽运光波长高透,透射率大于 95%。被

动锁模激光实验装置中,M3、M4 表示曲率半径分别为 100 mm 和 75 mm 的宽带抽运平凹镜,其对 770~1050 nm 波段的抽运激光的透射率大于 95%,对 1800~2075 nm 波段振荡光的反射率大于 99.9%,这种曲率半径较小的折叠镜对应更小的振荡光斑,易于实现低阈值运转。M5 为平凹反射镜,其凹面曲率半径为 75 mm,对 1800~2075 nm 波段激光的反射率大于 99.9%;M6 为平面反射镜,对 1800~2075 nm 波段激光的反射率大于 99.9%;M7 为输出耦合镜,对 1800~2050 nm 波段振荡光部分透过。实验共选用了 3 种规格的输出镜,透射率分别为 1.5%、3% 和 5%。

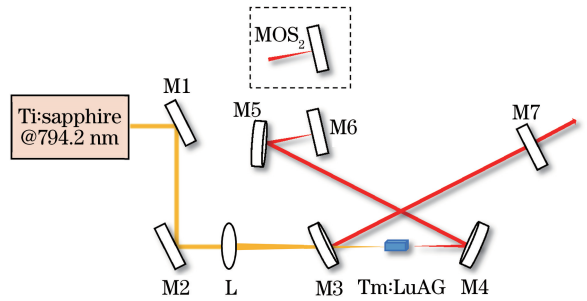


图 3 Tm:LuAG 被动激光锁模实验装置

Fig. 3 Experimental setup of Tm:LuAG passively laser mode-locked

4 实验结果的分析与讨论

采用第 3 节所述的光路获得的晶体吸收效率如图 4(a) 所示。可以发现,在激光器分别处于连续光运转、调 Q 锁模运转和非运转状态时,激光晶体对抽运光的吸收效率具有明显的差异。随后进一步的实验发现,使用不同透射率的输出镜,当激光处于运转状态时,对应的激光晶体吸收效率稍有不同;当腔内无激光运转时,激光晶体的吸收效率为 58.83%;当实现连续光运转时,对于透射率为 1.5% 的输出镜,激光晶体的吸收效率约为 88.16%,而选用透射率分别为 3% 和 5% 的输出镜,激光晶体的吸收效率分别约为 85.81% 和 86.89%;当将 M6 换成反射式 MoS₂ 时,选用透射率分别为 1.5% 和 3% 的输出镜,激光晶体的吸收效率约为 65.34%。

由图 4(b) 可知,当腔内实现连续光运转,且选用透射率分别为 1.5%、3% 和 5% 输出耦合镜时,出光阈值分别为 137、187、257 mW,斜效率分别为 26.3%、34.6% 和 38.8%,输出的最高功率分别为 701、905、940 mW。当将腔内平面镜 M6 换成反射式 MoS₂ 时,首先选用透射率为 1.5% 的输出镜,此

时出光阈值为 482 mW, 激光器最大输出功率为 190 mW, 当吸收抽运功率为 1188 mW 时, 实现稳定的调 Q 锁模, 斜效率为 9.5%; 选用透射率为 3% 的输出耦合镜时, 出光阈值为 525 mW, 当吸收抽运功率为 1743 mW 时, 实现了稳定的调 Q 锁模运转, 输出的最高功率为 306 mW, 斜效率为 14.3%; 选用透射率为 5% 的输出镜时, 由于腔内损耗过大, 无法

实现调 Q 锁模运转。由实验数据可知, 调 Q 锁模运转时, 透射率为 3% 输出镜条件下的输出功率比透射率为 1.5% 输出镜条件下的输出功率高 1.6 倍, 而出光阈值仅相差 43 mW, 所以在调 Q 锁模运转时主要使用透射率为 3% 的输出耦合镜。由于抽运光功率有限, 图 4 中对应的功率曲线并没有达到饱和, 相信后期通过提高抽运功率将有可能得到连续锁模。

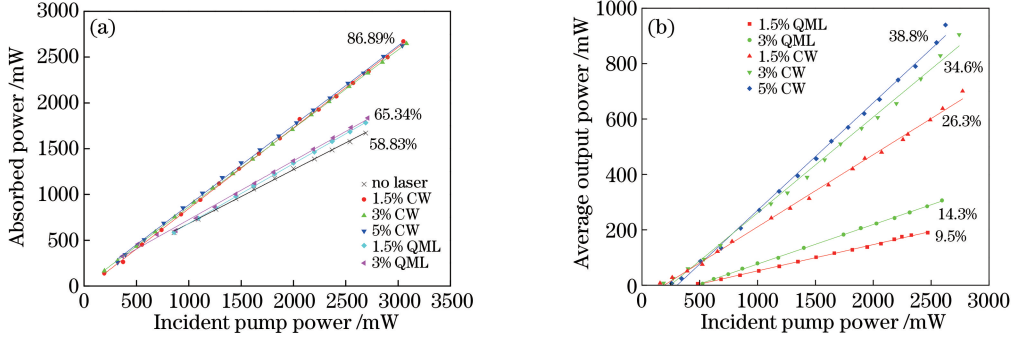


图 4 实验数据。(a) 晶体吸收功率随抽运功率的变化; (b) 连续光和锁模激光输出功率随吸收抽运功率的变化
Fig. 4 Experimental data. (a) Crystal absorbed power versus incident pump power; (b) output powers of continuous wave and mode-locked laser versus absorbed pump power

本实验采用光谱分析仪 (AvaSpecNIR256-2.5TEC, Avantes, Nederland) 测量所获得的锁模脉冲光谱如图 5 所示。可以看出, 输出脉冲信号的中心波长位于 2023 nm, 脉冲信号光谱的半峰全宽 $\Delta\lambda$ 为 12 nm。图 6 所示为采用光电二极管探测器 (ET-5000, EOT, USA) 测得的调 Q 锁模脉冲序列。测得调 Q 包络的宽度为 10 μ s, 重复频率为 20.83 kHz, 调 Q 包络下锁模脉冲的频率为 106.4 MHz, 这与 1.41 m 腔长对应的理论重复频率一致, 而且从脉冲序列图可以看出, 锁模脉冲的调制深度接近 100%。

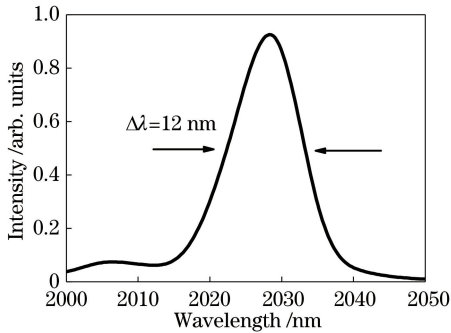


图 5 锁模脉冲信号的输出光谱
Fig. 5 Output spectrum of mode-locked signal

由于实际的脉冲宽度比实验中采用的自相关仪 (Pulse check 150, APE, Germany) 可测量的脉冲宽度上限 (150 ps) 宽, 因此没能测量到准确的脉冲自相关信号。本研究根据示波器的锁模脉冲信号, 通

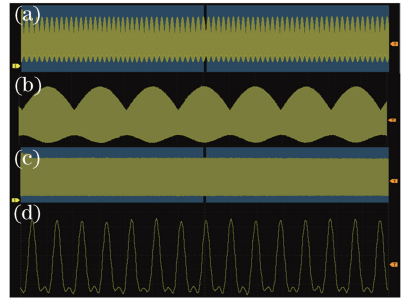


图 6 不同扫描时间的锁模脉冲序列。
(a) 1 ms; (b) 100 μ s; (c) 2 μ s; (d) 10 ns

Fig. 6 Mode-locked pulse trains recorded in different timescales. (a) 1 ms; (b) 100 μ s; (c) 2 μ s; (d) 10 ns

过以下公式来估算实际的锁模脉冲宽度,

$$t_m = \sqrt{t_p^2 + t_r^2 + t_o^2}, \quad (1)$$

式中: t_m 为测得的脉冲上升沿时间; t_r 为实际的脉冲上升沿时间; t_p 为二极管探测器的上升沿时间; t_o 为示波器的上升沿时间^[25]。而示波器的上升沿时间可表示为

$$t_o \times W_B = 0.35 \sim 0.4, \quad (2)$$

式中: W_B 为示波器的带宽。本实验所使用的 RIGOL 公司生产的 DS4024 数字示波器的带宽为 200 MHz, 因此可估算得到 $t_o = 1750$ ps。又已知实验测得的脉冲上升沿时间约为 1820 ps, 而 2 μ m 光电二极管探测器 (ET-5000, EOT, USA) 的上升沿时间为 35 ps, 因此可推算得到实际的锁模脉冲上升沿时间约为 498.67 ps, 而脉冲宽度约等于上升沿时间

的 1.25 倍, 因此实际的锁模脉冲宽度约为 623.34 ps。

5 结 论

采用反射式 MoS₂ 可饱和吸收体实现了 Tm: LuAG 激光晶体在 2 μm 波段附近的调 Q 锁模运转。该激光器的出光阈值为 324 mW, 当抽运功率达到 860 mW 时, 进入调 Q 运行状态。当抽运功率达到 1743 mW 时, 保持稳定的调 Q 锁模运行状态。当抽运功率达到 3.1 W 时, 中心波长为 2023 nm, 对应的最大输出功率为 306 mW, 重复频率为 106.4 MHz, 最大单脉冲能量为 2.88 nJ。实验结果表明, MoS₂ 可以作为 2 μm 波段固体激光器被动调 Q 锁模的快速启动元件, 反射式 MoS₂ 在高功率锁模中具有较高的应用价值。后期通过提高腔内功率密度, 进一步降低可饱和吸收体的损耗, 控制腔内色散将有可能实现连续锁模。

参 考 文 献

- [1] Hüttmann G, Yao C, Endl E. New concepts in laser medicine: towards a laser surgery with cellular precision[J]. *Medical Laser Application*, 2005, 20(2): 135-139.
- [2] Liu J, Tan F Z, Liu C, *et al.* Progress on high-power ultrashort-pulsed thulium-doped fiber lasers[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2017, 44(2): 0201003.
刘江, 谭方舟, 刘晨, 等. 高功率超短脉冲掺铥光纤激光器的研究进展[J]. *中国激光*, 2017, 44(2): 0201003.
- [3] Sorokin E, Sorokina I T, Mandon J, *et al.* Sensitive multiplex spectroscopy in the molecular fingerprint 2.4 μm region with a Cr²⁺: ZnSe femtosecond laser[J]. *Optics Express*, 2007, 15(25): 16540-16545.
- [4] Duan X M, Chen C, Ding Y, *et al.* Widely tunable middle infrared optical parametric oscillator pumped by the Q-switched Ho: GdVO₄ laser[J]. *Chinese Physics Letters*, 2018, 35(5): 054205.
- [5] Zhao Y G, Wang Y C, Zhang X Z, *et al.* 87 fs mode-locked Tm, Ho: CaYAlO₄ laser at ~2043 nm[J]. *Optics letters*, 2018, 43(4): 915-918.
- [6] Kong L C, Xie G Q, Yuan P, *et al.* Passive Q-switching and Q-switched mode-locking operations of 2 μm Tm: CLNGG laser with MoS₂ saturable absorber mirror[J]. *Photonics Research*, 2015, 3(2): A47-A50.
- [7] Ling W J, Xia T, Dong Z, *et al.* Passively Q-switched mode-locked low threshold Tm, Ho: LiLuF₄ laser with a graphene oxide saturable absorber[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2018, 45(3): 0301001.
- [8] 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.
- [9] Wan H L, Cai W, Wang F, *et al.* High-quality monolayer graphene for bulk laser mode-locking near 2 μm[J]. *Optical Quantum Electronics*, 2016, 48(1): 11-16.
- [10] Liu X M, Han D D, Sun Z P, *et al.* Versatile multi-wavelength ultrafast fiber laser mode-locked by carbon nanotubes[J]. *Scientific Reports*, 2013, 3: 2718-2723.
- [11] Martinez A, Fuse K, Xu B, *et al.* Optical deposition of graphene and carbon nanotubes in a fiber ferrule for passive mode-locked lasing[J]. *Optics Express*, 2010, 18(22): 23054-23061.
- [12] Solodyankin M A, Obraztsova E D, Lobach A S, *et al.* Mode-locked 1.93 μm thulium fiber laser with a carbon nanotube absorber[J]. *Optics Letters*, 2008, 33(12): 1336-1338.
- [13] Liu H H, Chow K K, Yamashita S, *et al.* Carbon-nanotube-based passively Q-switched fiber laser for high energy pulse generation[J]. *Optics & Laser Technology*, 2013, 45: 713-716.
- [14] Wang Q H, Kalantar-Zadeh K, Kis A, *et al.* Electronics and optoelectronics of two-dimensional transition metal dichalcogenides [J]. *Nature Nanotechnology*, 2012, 7(11): 699-712.
- [15] Ataca C, Şahin H, Ciraci S. Stable, single-layer MX₂ transition-metal oxides and dichalcogenides in a honeycomb-like structure[J]. *The Journal of Physical Chemistry C*, 2012, 116(16): 8983-8999.
- [16] Zhang H, Lu S B, Zheng J, *et al.* Molybdenum disulfide (MoS₂) as a broadband saturable absorber for ultra-fast photonics[J]. *Optics Express*, 2014, 22(6): 7249-7260.
- [17] Xia H W, Li M, Li T, *et al.* Few-layered MoS₂ as a saturable absorber for a passively Q-switched Er: YAG laser at 1.6 μm[J]. *Applied Optics*, 2017, 56(10): 2766-2770.
- [18] Lin H F, Zhu W, Xiong F B, *et al.* MoS₂-based passively Q-switched diode-pumped Md: YAG laser at 946 nm[J]. *Optics & Laser Technology*, 2017, 91: 36-39.
- [19] Wu C T, Ju Y L, Li Y F, *et al.* Diode-pumped Tm: LuAG laser at room temperature[J]. *Chinese Optics*

- Letters, 2008, 6(6): 415-416.
- [20] Zhou D. Preparation and laser properties of Yb^{3+} doped LuAG transparent ceramics [D]. Shanghai: Shanghai University, 2017: 90-92.
周鼎. Yb^{3+} 离子掺杂 LuAG 透明陶瓷制备及激光性能研究[D]. 上海: 上海大学, 2017: 90-92.
- [21] Wu C T, Ju Y L, Wang Q, *et al.* Room temperature operation of single frequency $\text{Tm}:\text{LuAG}$ laser end-pumped by laser-diode [J]. Laser Physics Letters, 2009, 6(10): 707-710.
- [22] Chen F, Wu C T, Ju Y L, *et al.* Diode-pumped Q-switched $\text{Tm}:\text{LuAG}$ ring laser operation at room temperature[J]. Laser Physics, 2012, 22(2): 371-374.
- [23] Feng T L, Yang K J, Zhao S Z, *et al.* Efficient CW dual-wavelength and passively Q-switched $\text{Tm}:\text{LuAG}$ lasers [J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2015, 27: 7-10.
- [24] Feng T L, Yang K J, Zhao J, *et al.* 1.21 W passively mode-locked $\text{Tm}:\text{LuAG}$ laser [J]. Optics Express, 2015, 23(9): 11819-11825.
- [25] Li Z Y, Zhang B T, Yang J F, *et al.* Diode-pumped simultaneously Q-switched and mode-locked $\text{Md}:\text{GdVO}_4/\text{LBO}$ red laser [J]. Laser Physics, 2010, 20(4): 761-765.