# 基于双壁碳纳米管低阈值 1895 nm 锁模激光器

令维军<sup>1</sup>,夏涛<sup>1</sup>,董忠<sup>1</sup>,张明霞<sup>1</sup>,左银艳<sup>1</sup>,李可<sup>1</sup>,路飞平<sup>1</sup>,刘勍<sup>1</sup>,赵小龙<sup>1</sup>,王勇刚<sup>2</sup> <sup>1</sup>天水师范学院激光技术研究所,甘肃天水 741001;

2陕西师范大学物理学与信息技术学院,陕西西安 710062

摘要 结合特殊设计的低阈值五镜折叠腔,利用垂直生长法自制的双壁碳纳米管,并将其作为可饱和吸收体在 Tm,Ho:LLF激光器中实现了连续锁模运转。在连续激光运转下,吸收抽运阈值低至 59 mW,光-光转化效率为 30.09%。在腔内插入饱和吸收体后,吸收抽运阈值提高至 107 mW。当吸收抽运功率大于 1562 mW 时,激光运转 进入稳定的连续锁模状态,对应锁模脉冲的重复频率为 100 MHz,脉冲宽度约为 515 ps;当吸收抽运功率达到 2 W 时,最高输出功率为 234 mW,中心波长为 1895 nm,对应最大单脉冲能量为 2.34 nJ。 关键词 激光器:低阈值谐振腔;双壁碳纳米管;连续锁模

中图分类号 TN248.1 文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201838.0614001

## Low Threshold 1895 nm Mode-Locked Laser Based on Double Wall Carbon Nanotubes

Ling Weijun<sup>1</sup>, Xia Tao<sup>1</sup>, Dong Zhong<sup>1</sup>, Zhang Mingxia<sup>1</sup>, Zuo Yinyan<sup>1</sup>,

Li Ke<sup>1</sup>, Lu Feiping<sup>1</sup>, Liu Qin<sup>1</sup>, Zhao Xiaolong<sup>1</sup>, Wang Yonggang<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institute of Laser Technology, Tianshui Normal University, Tianshui, Gansu 741001, China;

<sup>2</sup> College of Physics and Information Technology, Shaanxi Normal University, Xi'an, Shaanxi 710062, China

**Abstract** We combine the specially designed low threshold five-mirror folded cavity, employ the home-made double wall carbon nanotubes (DWCN) as saturable absorber by vertical growth method, and realize continuous mode locking operation in Tm, Ho:LLF all solid state laser. Absorbed pump threshold is as low as 59 mW under the continuous-wave laser operation, and the light to light conversion efficiency reaches 30.09%. The absorbed pump threshold is increased to 107 mW after DWCN is inserted in the cavity. When the absorbed pump power is higher than 1562 mW, the laser operation gets into a stable continuous mode-locked state, for which the corresponding mode-locked pulse repetition frequency is 100 MHz, and the pulse width is about 515 ps. When absorbed pump power reaches 2 W, the maximum output power is 234 mW, the central wavelength is 1895 nm, and the maximum single pulse energy is 2.34 nJ.

Key words lasers; low threshold resonator; double wall carbon nanotubes; continuous-wave mode locking OCIS codes 140.3295; 140.3430; 160.3380; 140.4050

1 引 言

近年来,利用新型可饱和吸收体(SAs)实现皮 秒或飞秒尺度的超短激光脉冲,已成为超快激光技 术的前沿热点研究内容之一<sup>[1-2]</sup>。新型 SAs 材料的 应用将大大降低超短脉冲激光器的制造成本,简化 制造工艺,拓宽锁模的波长范围,有望得到脉冲更 短、性能更优的短脉冲激光器。Wang 等<sup>[3]</sup>在 Tm:MgWO4全固态激光器中利用石墨烯作为可饱 和吸收体实现 86 fs 的锁模运转,这是迄今为止获得 的2 μm波段激光器的最短激光脉冲。

碳纳米管具有优异的电学、光学和力学等性能,

E-mail: wjlingts@sina.com

收稿日期: 2017-12-12; 收到修改稿日期: 2018-01-11

基金项目:国家自然科学基金(61465012,61564008,11774257,61461046,61665010,61661046)、国家重点研发计划 (2017YFB045200)

**作者简介**:令维军(1968—),男,博士,教授,硕士生导师,主要从事超快激光技术方面的研究。

1991年被发现时就被认为是碳家族中最具发展前 景的成员之一,在超短脉冲激光研究领域,其作为新 型可饱和吸收体一维纳米材料,应用广阔。按照石 墨层数构成,碳纳米管可分为单壁碳纳米管 (SWCNT)和多壁碳纳米管。单壁碳纳米管可饱和 吸收体(SWCNT-SAs)已在0.8~1.95  $\mu$ m 波段激光 器中成功实现了被动锁模运转<sup>[4-7]</sup>;在 2  $\mu$ m 波段固 体激光器中,Cho 等<sup>[8]</sup>首次在 Tm:KLuW 晶体中实 现了 1.2 ps 被动锁模运转; Schmidt 等<sup>[9-10]</sup>在 Tm:KLuW晶体和 Tm:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 陶瓷中分别实现了 141 fs 和 175 fs 的锁模输出。

双壁碳纳米管(DWCNT)是最简单的多壁碳纳 米管,是由两层石墨层片按照一定螺旋角卷曲而成 的无缝、中空同轴管状结构,内壁和外壁的直径分别 为 0.8~1.1 nm 和 1.6~1.8 nm,内外层间距为 0.34~0.39 nm<sup>[11]</sup>。在相同辐照条件下,DWCNT 比 SWCNT 更稳定,能隙更小,故导电性能更优<sup>[12]</sup>, 且双壁碳纳米管可饱和吸收体(DWCNT-SAs)具有 超快的恢复时间,在1~2 µm 波段具有宽的吸收 带、高的损伤阈值和化学稳定性[11,13-14]。目前关于 DWCNT-SAs 锁模的报道主要集中在 1 µm 波段的 固体和光纤激光器中<sup>[15-16]</sup>,2μm 波段的锁模报道很 少,如 Wang 等[17] 在掺 Tm3+的石英光纤中实现了 0.98 ps 的锁模运转, Qu 等<sup>[18]</sup>在 Tm: YAP 激光器 中实现了锁模运转。本课题组联合陕西师范大学一 直致力于新型可饱和吸收体在 2 µm 波段锁模特性 方面的研究。

抽运源是自行搭建的波长范围在 720~850 nm 可调的掺钛蓝宝石固体激光器,抽运波长正好对应 掺 Tm<sup>3+</sup> 或 Tm<sup>3+</sup>、Ho<sup>3+</sup> 共掺激光晶体的一个或多 个强吸收峰,可利用一台抽运源对不同的掺 Tm<sup>3+</sup> 或 Tm<sup>3+</sup>、Ho<sup>3+</sup>共掺激光晶体和新型可饱和吸收体 材料的特性进行系统研究,解决了 LD 抽运源只能 对特定吸收波段激光晶体的限制问题,且光束质量 高。但该抽运源成本昂贵,降低成本的最好方式是 降低抽运源的输出功率。选择 Tm, Ho:LLF 晶体 作为激光增益介质,该晶体相对于其他基质材料,有 相对较低的声子能量、小的吸收系数、低的激光阈值 和低的上变频损耗<sup>[19]</sup>。文献[20]中利用 WS<sub>2</sub>-SAs 在该晶体的固态激光器中实现了稳定的调 Q 锁模 (QML)运转,激光的出光阈值较低,为143 mW,光-光转化效率较高,为28.97%,这为降低成本提供了 借鉴。

为进一步降低成本,本文在标准的 X 型五镜折

叠谐振腔(第一和第二平凹折叠镜的凹面曲率半径 均为100 mm,记作100-100 腔)的基础上,改变第一 和第二平凹折叠镜的凹面曲率半径,最终得到出光 阈值低至59 mW、光-光转化效率为30.09%的低阈 值、高效率 Tm,Ho:LLF激光器,极大地低了激光 器成本,具有一定的学术意义。随后引入 DWCNT-SAs,在 Tm,Ho:LLF激光器中成功获得稳定的被 动连续锁模(CWML)运转,激光的出光阈值低至 107 mW,锁模脉冲序列的重复频率为100 MHz,且 当吸收抽运功率大于1562 mW、对应抽运光输出功 率为2.74 W时,可实现稳定的连续锁模运转。

#### 2 DWCNT-SAs 材料的制备

DWCNT 材料可以通过石墨电弧法(CA)、激光 蒸气法(PLA)和化学气相沉积法(CVD)的方式制 备。本实验采用 CVD 方式直接合成获得。

DWCNT-SAs可以通过旋转涂布、喷雾和卧式 蒸发等方式制作<sup>[21]</sup>。本实验采用垂直生长法制备, 该方法简单、容易操作,且可将材料均匀涂布在石英 薄片表面。首先将浓硫酸和双氧水按体积比为1:3 比例混合,搅拌均匀后将石英薄片放入其中,直到石 英薄片表面不再产生气泡为止,取出晾干,得到亲水 处理的石英薄片;将 DWCNT 粉末置于10 mL、质 量分数为0.1%的硫酸钠(SDS)水溶液中,超声约 10 h后离心,制备出0.6 mg/mL的 DWCNT 溶液; 将 DWCNT 溶液注入聚苯乙烯方盒中,将亲水处 理过的石英片沿对角线垂直放入盒中,静置15 d,待 溶液蒸发完后,取出石英片,DWCNT 材料沉积在 石英片两侧,DWCNT-SAs 制备完成。

#### 3 实验装置

Tm,Ho:LLF 锁模的激光实验装置如图1所 示。抽运源为自行设计搭建的全固态可调谐掺钛蓝 宝石固体激光器,中心波长为780.5 nm,最高输出 功率为3.4 W。激光器谐振腔由第一平凹折叠镜 M<sub>3</sub>、第二平凹折叠镜 M<sub>4</sub>、第三平凹折叠镜 M<sub>5</sub>、平面 高反镜 M<sub>6</sub> 和输出耦合镜 M<sub>7</sub> 组成五镜折叠腔系 统。实验中,Tm,Ho:LLF 激光晶体采用布氏角切 割,两端面均被抛光,掺杂铥(Tm<sup>3+</sup>)和钬(Ho<sup>3+</sup>)的 离子数分数分别为5%和0.5%,尺寸3 mm×3 mm× 8 mm。为更好地给晶体散热,将晶体用钢箔纸包 裹,夹在紫铜冷却块内,用8℃的恒温循环水进行冷 却。为保证低温下晶体表面不会出现冷凝水珠,实 验室湿度保持在 30%以下,由于输出中心波长 1895 nm 处 于 水 分 子 的 强 吸 收 波 段 1800 ~ 2000 nm, 避免了空气中的水蒸气对激光器锁模的 影响。折叠镜对 770~1050 nm 波长激光的透过率 大于 95%,对 1800~2075 nm 波长激光的反射率高 于99.9%,平面高反镜对 1800~2075 nm 波长激光 的反射率高于99.9%,输出镜的透过率为 1.5%。实 验采用 3 种折叠腔参数(曲率半径),分别为  $r_3 =$  100 mm, $r_4 = 100$  mm, $r_3 = 100$  mm, $r_4 = 75$  mm 及  $r_3 = 50$  mm, $r_4 = 75$  mm,简记为 100-100 腔,100-75 腔和 50-75 腔,其中 100-75 腔对应的聚焦透镜焦距 为 120 mm, 50-75 腔对应的聚焦透镜焦距为 100 mm, $M_5$  的凹面曲率半径  $r_{M_c}$ 为 100 mm。



图 1 五镜折叠腔原理图

Fig. 1 Schematic configuration of five-mirror folding cavity

### 4 分析与讨论

激光晶体对抽运光的吸收效率如图 2(a)所示。 激光非运转和运转状态下,激光晶体对抽运激光的 吸收效率不同,在激光运转状态下激光晶体的吸收 效率大于非运转状态,这是由于激光运转状态下消 耗了大量的上能级反转粒子数,提高了晶体吸收效 率。在激光非运转状态下,聚焦透镜为120 mm 和 100 mm对应的晶体吸收效率分别为33.75%和 33.61%,在激光运转状态下,100-100 腔对应晶体的 吸收效率约为77.4%,100-75 腔和50-75 腔对应晶 体的吸收效率约在55.45%~57.82%,详见表1。

100-100 腔、100-75 腔和 50-75 腔对应的连续光 (CW)运转状态下输出功率随平均输出功率变化如 图 2(b) 所示。表 1 列出了 3 种腔对应的吸收抽运 功率出光阈值、斜效率、最高功率和光-光转换效率, 100-75 腔比标准腔(100-100 腔)获得了更低的出光 阈值和更高的光-光转化效率,但出光阈值比 50-75 腔高,50-75 腔获得了最低的出光阈值。主要原因 如下:利用 ABCD 矩阵理论模拟 3 种腔中激光晶体 的振荡光斑,得出在 100-100 腔、100-75 腔和 50-75 腔中晶体中心的振荡光束腰半径 w 分别约为 40、 30、25 µm;100-75 腔相对标准腔晶体中振荡光斑面 积从  $40^2 \mu m^2$  减小至  $30^2 \mu m^2$ , 腔内激光强度增加了 1.78 倍;50-75 腔相对标准腔晶体中振荡光斑面积 从 40<sup>2</sup> μm<sup>2</sup> 减小至 25<sup>2</sup> μm<sup>2</sup>,腔内激光强度增加了 2.56 倍。在同样的输出功率下,50-75 腔极大地降 低了激光运转阈值。但对于 50-75 腔,由于激光运 转的稳区变小,将 M<sub>3</sub>曲率半径 r<sub>3</sub>减小到 50 mm, 导致谐振腔的折叠角变大,一定程度上影响了激光 谐振腔与抽运光的模式匹配,从而降低了输出激光 的光-光转换效率。

表 1 实验详细数据 Table 1 Detail experimental data

Operating state	Radius of curvature	Focal length of lens L /mm		Crystal absorption	Light threshold	Lock mode threshold	Slope efficiency	Maximum output	Optical to optical
	r / mm	M <sub>3</sub>	$\mathbf{M}_4$	efficiency/%	power $/mW$	power $/mW$	$\eta/ \%$	power $/mW$	efficiency/%
No laser	120			33.75					
	100			33.61					
CW	120	100	100	77.40	108		39.16	979	28.88
	120	100	75	57.82	59		53.55	1044	30.09
	100	50	75	55.84	40		33.31	639	18.47
CWML	120	100	75	56.43	107	1562	12.50	234	6.70
QML	100	50	75	55.45	79		4.75	86	2.53

腔内引入 DWCNT-SAs 后,在 50-75 腔中仅实 现了调 Q 锁模运转,斜效率  $\eta$  为 4.75%,最高输出 功率为 86 mW。在 100-75 腔中实现了稳定的连续 锁模运转,测得激光的稳定锁模阈值为 1562 mW, 对应抽运光的输出功率为 2.74 W,斜效率  $\eta$  为 12.50%,最高输出功率为 234 mW,利用 ABCD 矩 阵科计算出 100-75 腔中 DWCNT-SAs 处的光束腰 半径 w 约为 137  $\mu$ m,计算出的不同吸收抽运功率 对应 DWCNT-SAs 处的能流通量,如图 2(c)所示。 能流通量大于 106  $\mu$ J • cm<sup>-2</sup>时可获得稳定的调 Q

 $w_{1/2}$ 为12 nm。

锁模运转,大于 196  $\mu$ J • cm<sup>-2</sup>时可获得稳定的连续 锁模运转,而 50-75 腔因为 DWCNT-SAs 处的能流 通量小于 196  $\mu$ J • cm<sup>-2</sup>,所以不能实现连续锁模 运转。





Fig. 2 (a) Crystal absorption efficiency; (b) average output power for CW and mode-locked operation versus absorbed pump power; (c) energy flux versus absorption pump power; (d) emission spectrum of the mode locking laser

如图 3 所示,通过快速光电二极管(ET-5000) 连接的数字示波器(RIGOL,DS4034)探测锁模脉冲 序列,列出扫描时间为 1 ms/div 和 10 ns/div 所获



图 3 扫描时间为 1 ms/div 和 10 ns/div 的锁模脉冲序列 Fig. 3 Mode-locked pulse trains recorded in 1 ms and 10 ns per division time scales

得的连续锁模脉冲序列,脉冲序列重复频率为 100 MHz,正好对应 1.5 m 的激光腔长,表明激光已 实现锁模运转,对应最大的单脉冲能量为 2.34 nJ。 锁模脉冲的宽度可估算为<sup>[22]</sup>

图 2(d) 为连续锁模运转下采用光谱分析仪

(AvaSpec-NIR256-2.5TEC,分辨率为6nm)测量输

出激光光谱,中心波长为1895 nm,光谱的半峰全宽

$$t_{\rm m} = \sqrt{t_{\rm r}^2 + t_{\rm p}^2 + t_{\rm o}^2}, \qquad (1)$$

式中: $t_m$  为被测锁模脉冲上升沿时间; $t_r$  为实际锁 模脉冲上升沿时间; $t_p$  为光电探测器上升沿时间; $t_o$ 为示波器上升沿时间。实验中被测锁模脉冲上升沿 时间约为 1.92 ns,光电探测器上升沿时间为 35 ps。 已知  $t_o \times W_B \in [0.35, 0.40]$ ,其中  $W_B$  为示波器的带 宽。实验中示波器的带宽为 200 MHz,取  $t_o \times W_B =$ 0.375,可估算得出  $t_o = 1875$  ps,因此可算出,实际 锁模脉冲上升沿时间约为 412 ps,这仅为一个脉冲 上升沿的粗略估算。若取  $t_o \times W_B > 0.375$ ,锁模脉 冲上升沿将进一步减小。

5 结 论

采用特殊设计的低阈值、高效率五镜折叠腔,腔 内引入利用垂直生长法自制的 DWCNT-SAs,在 Tm,Ho:LLF 激光器中实现了连续锁模运转。在连 续激光运转状态下,出光阈值低至 59 mW,斜效率 为53.55%,最高输出功率为 1044 mW,光-光转化效 率为 30.09%。在锁模激光运转状态下,激光的出光 阈值为 107 mW,当吸收抽运功率大于 1562 mW 时,实现了稳定的连续锁模运转,锁模脉冲的重复频 率为 100 MHz,脉冲宽度约为 515 ps,最高功率 234 mW,中心波长为 1895 nm,最大单脉冲能量为 2.34 nJ。实验表明,本文成功运用 DWCNT-SAs 在 抽运光功率为 2.74 W 处获得了连续锁模运转,后期 将在腔内引入色散,以期得到飞秒锁模脉冲。

#### 参考文献

- [1] Mou C B, Zou C H, Huang Q Q, et al. Research progress in polarization lock and polarization processing vector soliton based on carbon nanotube mode-locked fiber laser [J]. Chinese Journal of Lasers, 2017, 44(7): 0703003.
  牟成博,邹传杭,黄千千,等.基于碳纳米管锁模光 纤激光器的偏振锁定和偏振进动矢量孤子的研究进 展[J]. 中国激光, 2017, 44(7): 0703003.
- [2] Wei C, Shi H X, Luo H Y, et al. Research progress of pulsed mid-infrared fiber lasers using two-dimensional materials[J]. Chinese Journal of Lasers, 2017, 44(7): 0703009.
  韦晨,史红霞,罗鸿禹,等.基于二维材料调制的中 红外脉冲光纤激光器的研究进展[J].中国激光, 2017, 44(7): 0703009.
- [3] Wang Y C, Chen W D, Mero M, et al. Sub-100 fs Tm: MgWO<sub>4</sub> laser at 2017 nm mode locked by a graphene saturable absorber [J]. Optics Letters, 2017, 42(16): 3076-3079.
- [4] Set S Y, Yaguchi H. Mode-locked fiber lasers based on a saturable absorber incorporating carbon nanotubes[C]. Optical Fiber Communications Conference, 2004: PD44.
- [5] Rotermund F. Mode-locking of solid-state lasers by single-walled carbon-nanotube based saturable absorbers[J]. Quantum Electronics, 2012, 42(8): 663-670.
- [6] Chen H R, Wang Y G, Tsai C Y, et al. Highpower, passively mode-locked Nd:GdVO<sub>4</sub> laser using single-walled carbon nanotubes as saturable absorber [J]. Optics Letters, 2011, 36(7): 1284-1290.

- Liu Y, Wang Y, Liu J, et al. High power ultrafast Nd: YVO<sub>4</sub>, laser mode locked by single wall carbon nanotube absorber[J]. Applied Physics B, 2011, 104 (4): 835.
- [8] Cho W B, Yim J H, Sun Y C, et al. Single-walled carbon nanotube saturable absorber mode-locking of a Tm: KLuW laser near 2 μm [C]. Advanced Solid-State Photonics, 2010, ATuA: ATuA3.
- [9] Schmidt A, Choi S Y, Yeom D I, et al. Femtosecondpulses near 2 μm from a Tm : KLuW laser mode-locked by a single-walled carbon nanotube saturable absorber [J]. Applied Physics Express, 2012, 5(9): 092704.
- [10] Schmidt A, Koopmann P, Huber G, et al. 175 fs Tm: Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> laser at 2.07 μm mode-locked using single-walled carbon nanotubes [J]. Optics Express, 2012, 20(5): 5313.
- [11] Hasan T, Sun Z, Tan P, et al. Double-wall carbon nanotubes for wide-band, ultrafast pulse generation
   [J]. ACS Nano, 2014, 8(5): 4836-4847.
- [12] Maeng I, Kang C, Oh S J, et al. Terahertz electrical and optical characteristics of double-walled carbon nanotubes and their comparison with single-walled carbon nanotubes [J]. Applied Physics Letters, 2007, 90(5): 051914.
- [13] Yang Q, Wang Y G, Liu D H, et al. Dualwavelength mode-locked Yb: LuYSiO<sub>5</sub> laser with a double-walled carbon nanotube saturable absorber [J]. Laser Physics Letters, 2012, 9(2): 135-140.
- [14] Hertel T, Hagen A, Talalaev V, et al. Spectroscopy of single- and double-wall carbon nanotubes in different environments[J]. Nano Letters, 2005, 5(3): 511-514.
- [15] Zhang L, Wang Y G, Yu H J, et al. Passive modelocked Nd: YVO<sub>4</sub>, laser using a multi-walled carbon nanotube saturable absorber [J]. Laser Physics, 2011, 21(8): 1382-1386.
- [16] Cheng K N, Lin Y H, Lin G R. Single-and doublewalled carbon nanotube based saturable absorbers for passive mode-locking of an erbium-doped fiber laser [J]. Laser Physics, 2013, 23(4): 045105.
- [17] Wang F, Jiang Z, Hasan T, et al. Double-wall carbon nanotube Q-switched and mode-locked twomicron fiber lasers[C] // Proceedings of 2012 IEEE International Conference on Lasers and Electro-Optics, 2012: 13063752.
- [18] Qu Z S, Wang Y G, Liu J, et al. Passively modelocked 2 μm Tm : YAP laser with a double-wall carbon nanotube absorber [J]. Chinese Physics B, 2012, 21(1): 64211.
- [19] Qiao L, Yang F G, Wu Y H, *et al*. Theoretical and experimental researches on Tm and Ho codoped Q-

switching laser [J]. Acta Physica Sinica, 2014, 63 (21): 137-143. 乔亮,羊富贵,武永华,等. Tm, Ho 双掺调 Q 激光 系统理论与实验研究 [J]. 物理学报, 2014, 63(21): 137-143.

- [20] Ling W J, Xia T, Dong Z, et al. Passively Q-switched mode-locked Tm, Ho:LLF laser with a WS<sub>2</sub> saturable absorber [J]. Acta Physica Sinica, 2017, 66(11): 130-135.
  令维军,夏涛,董忠,等.基于WS<sub>2</sub>可饱和吸收体的 调 Q 锁模 Tm, Ho:LLF 激光器 [J].物理学报, 2017, 66(11): 130-135.
- [21] Ma Z J, Wei R F, Hu Z L, et al. 2D materials and

quasi-2D materials: nonlinear optical properties and corresponding applications [J]. Chinese Journal of Lasers, 2017, 44(7): 0703002.

马志军,魏荣妃,胡忠亮,等. 2D 材料和准 2D 材料 的非线性光学特性及应用[J].中国激光,2017,44 (7):0703002.

[22] Qu Z S, Ma B M, Liu J. Research on pulse laser characteristics for 2 μm Tm: YAP laser based on carbon nanotube absorber [J]. Chinese Journal of Lasers, 2011, 38(11): 1102009.
曲遵世,马宝民,刘杰.基于碳纳米管的 Tm: YAP 2 μm脉冲激光特性实验研究 [J]. 中国激光, 2011, 38(11): 1102009.