

## 高单脉冲能量被动调 Q 锁模 Tm, Ho: LLF 激光器

袁 振, 令维军\*, 陈 晨, 杜晓娟, 王 翀, 王文婷, 薛婧雯, 董 忠

(天水师范学院 激光技术研究所, 甘肃 天水 741001)

**摘要:** 报道了一种采用氧化石墨烯作为可饱和吸收体的二极管泵浦的被动调 Q 和调 Q 锁模运转的 Tm, Ho: LLF 激光器。采用透过率分别为 3%、5% 和 9% 的输出镜, 首先研究了 Tm, Ho: LLF 激光器的连续运转特性。实验和模拟结果均表明采用透过率为 9% 的输出镜输出特性最好, 当最大泵浦功率为 20 W 时, 连续光输出功率高至 1793 mW。接着以氧化石墨烯为饱和吸收体, 采用透过率为 9% 的输出镜研究了 Tm, Ho: LLF 激光器的调 Q 和调 Q 锁模特性。实验表明: 当 790 nm LD 泵浦功率小于 7.26 W 时, 激光处于单纯调 Q 运转状态; 当大于 7.26 W 时, 激光器进入稳定的调 Q 锁模状态, 当最大泵浦功率为 20 W 时, 最大输出功率为 1052 mW, 锁模重复频率为 53.19 MHz, 对应的平均单脉冲能量为 19.77 nJ, 该单脉冲能量是目前 2  $\mu\text{m}$  锁模激光器的最高指标, 同时证实了氧化石墨烯材料在大能量高功率激光锁模中是发展潜力优良的二维锁模材料。

**关键词:** 2  $\mu\text{m}$  激光器; 全固态激光器; Tm, Ho: LLF 晶体; 高单脉冲能量; 高功率激光器

**中图分类号:** TN248.1 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20210349

## High single pulse energy passively Q-switched mode-locked Tm, Ho: LLF laser

Yuan Zhen, Ling Weijun\*, Chen Chen, Du Xiaojuan, Wang Chong, Wang Wenting, Xue Jingwen, Dong Zhong

(Institute of Laser Technology, Tianshui Normal University, Tianshui 741001, China)

**Abstract:** A LD pumped passively Q-switched and Q-switched mode-locked Tm, Ho: LLF laser using graphene oxide as saturable absorber was reported. Using output mirrors with transmittance of 3%, 5% and 9%, the continuous operation characteristics of Tm, Ho: LLF laser were studied. The experimental and simulation results show that the output mirror with 9% transmittance has the best output characteristics. When the maximum pump power is 20 W, the CW output power is as high as 1793 mW. Then, the Q-switched and Q-switched mode-locked characteristics of Tm, Ho: LLF laser were studied by using graphene oxide as saturable absorber under OC with 9%. The experimental results show that when the pump power of 790 nm LD is less than 7.26 W, the laser is in a simple Q-switched state. When the power is greater than 7.26 W, the laser operation enters into a stable Q-switched mode-locked state. When the maximum pump power is 20 W, the maximum output power is 1052 mW, the repetition rate of mode-locked is 53.19 MHz, and the corresponding average single pulse energy is 19.77 nJ. This average single pulse energy is currently the highest level of a 2  $\mu\text{m}$  mode-locked laser. At the same time, it is confirmed that graphene oxide is a promising two-dimensional mode-locked material in high-energy mode-locked lasers.

收稿日期: 2021-05-28; 修订日期: 2021-07-06

基金项目: 国家自然科学基金 (11774257, 61564008); 国家重点研发计划 (2017YFB0405204); 甘肃省高等学校产业支撑计划项目 (2020C-23); 甘肃省重点研发计划项目 (21YFIGE300)

作者简介: 袁振, 男, 硕士生, 主要从事超快激光技术方面的研究。

通讯作者: 令维军, 男, 教授, 博士, 主要从事超快激光技术方面的研究。

**Key words:** 2  $\mu\text{m}$  laser; all solid-state laser; Tm, Ho: LLF crystal; high single pulse energy; high power laser

## 0 引言

2  $\mu\text{m}$  波段激光处于大气的窗口波段, 该波段宽带锁模光谱覆盖了大气中的水分子、甲烷、二氧化碳分子的吸收峰, 在大气监测、遥感、外科手术中具有特殊的应用价值<sup>[1-2]</sup>。尤其是该波段高单脉冲能量的激光在非线性变换研究、X 射线产生、飞秒激光同步泵浦、粒子加速、空间目标探测、超快微加工等多方面具有广阔的应用前景<sup>[3-4]</sup>。目前高峰值功率、高单脉冲能量的全固态脉冲激光脉冲产生大都集中在 1  $\mu\text{m}$  掺镱和 0.8  $\mu\text{m}$  掺钛蓝宝石激光器, 而工作在 2  $\mu\text{m}$  波段高单脉冲能量的全固态激光器未见报道。

目前, 2  $\mu\text{m}$  波段激光脉冲的产生主要采用被动锁模技术, 其中最常见的饱和吸收体是半导体可饱和吸收镜 (SESAM)<sup>[4]</sup> 新型二维材料<sup>[5-6]</sup>。由于 SESAM 的制造工艺复杂、成本昂贵、带宽受限等问题, 限制了它的应用范围。石墨烯材料是单一碳原子层, 其一种以  $\text{sp}^2$  杂化连接的碳原子紧密堆积成单层二维蜂窝状晶格结构, 自 2004 年被发现以来就受到了广泛的关注<sup>[7]</sup>。石墨烯具有超强的硬度, 良好的热导性, 较高的光电转化率, 以及优异的光学、电学、力学特性等众多优点<sup>[8]</sup>。由于它是零带隙材料, 其价带顶和导带低是相交的, 在较宽波长范围内吸收率约为 2.3%, 理论上它可以吸收任何波段的光<sup>[9]</sup>。目前, 已经证实石墨烯具有从可见光到太赫兹波段的超宽吸收范围。不仅如此, 石墨烯还具有超快的恢复时间和适度的调制深度, 当入射光的强度超过某一临界值时, 石墨烯对其的吸收会达到饱和, 表明它是一种优良的可饱和吸收体, 并利用它来实现激光的锁模运转。但石墨烯材料制备较为复杂, 并且不溶于水和有机溶剂, 因此在使用中受到限制。此后人们开始将目光转移至亲水性更好、性能更稳定的氧化石墨烯 (Graphene Oxide, GO)。由于具有较低的饱和强度, 其表面张力很低, 这就导致其相比单壁碳纳米管具有更高的损伤阈值, 适合应用于高功率锁模<sup>[10]</sup>, 目前已经被广泛应用于 2  $\mu\text{m}$  激光器中。2012 年, 上海交通大学在 Tm:CLNGG 激光器中利用石墨烯得到了 729 fs<sup>[11]</sup> 的超短脉冲激光的输出。2015 年, Ma 等人在 Tm:YAG 陶瓷激光器

中利用石墨烯材料作为锁模器件得到了 2.8 ps 和 158 mW 的锁模激光输出<sup>[12]</sup>。2017 年, Wang 等人采用 GO 作为饱和吸收体在 Tm:MgWO<sub>4</sub> 激光器中实现了锁模运转, 在 2 017 nm 波段处的脉冲宽度短至 96 fs<sup>[13]</sup>。2019 年, 笔者课题组利用 GO 在 Tm:LuAG 激光器<sup>[14]</sup> 中实现了调 Q 锁模运转。

实验中选择的增益介质为 Tm,Ho:LLF 激光晶体, 相对于其他掺铊类介质, Tm,Ho:LLF 具有 1.82~2.06  $\mu\text{m}$  的可调谐光谱, 而且相对于其他氟化物基质, Tm,Ho:LLF 声子能量更低, 吸收系数更小, 并且具有较低的上变频损耗等优点, 因此更适合低阈值和高效率运转<sup>[15]</sup>。

文中报道了高单脉冲能量、低重复频率的 Tm,Ho:LLF 激光器, 采用 790 nm LD (Laser diode, LD) 作为泵浦源。为了实现与 LD 泵浦光更好的匹配, 采用折叠镜曲率半径  $R=300$  的 X 型谐振腔, 利用 GO 可饱和吸收体实现了稳定的被动调 Q 锁模运转, 激光输出的中心波长为 1 895 nm, 连续运转时激光器最大输出功率为 1 793 mW, 调 Q 锁模运转时最大输出功率为 1 052 mW, 调 Q 包络下的锁模重复频率为 53.19 MHz, 对应的平均单脉冲能量为 19.77 nJ, 调制深度接近于 100%。

## 1 实验装置

Tm,Ho:LLF 被动调 Q 锁模激光器的实验装置如图 1 所示。抽运源为光纤耦合 790 nm LD, 最大输出功率为 30 W, 纤芯直径为 105  $\mu\text{m}$ , 数值孔径 (NA) 为 0.22, 激光增益介质为 Tm,Ho:LLF 晶体, 布儒斯特角切割, 并对两个通光面进行抛光, 其中  $\text{Tm}^{3+}$  掺杂浓度为 5 at.%,  $\text{Ho}^{3+}$  掺杂浓度为 0.5 at.%, 晶体尺寸大小为 3 mm $\times$ 3 mm $\times$ 8 mm。实验中为了降低激光运转时增益介质中的“热透镜效应”, 需对晶体进行制冷, 用烟箔将其包裹, 然后夹在紫铜热沉微通道冷却片内, 最后使用恒温水循环系统 (北京博医康, HX-1020) 对紫铜晶体夹进行冷却, 水温维持在 11  $^{\circ}\text{C}$  左右 (控制精度  $\pm 0.2$   $^{\circ}\text{C}$ )。

实验中采用类似 X 型腔结构, 对应两臂长分别为 1 072 mm 和 1 443 mm, 总腔长为 2 819 mm。L<sub>1</sub> 和 L<sub>2</sub> 组成 LD 泵浦的聚焦系统, 聚焦透镜 L<sub>1</sub> 和 L<sub>2</sub> 是扩束比

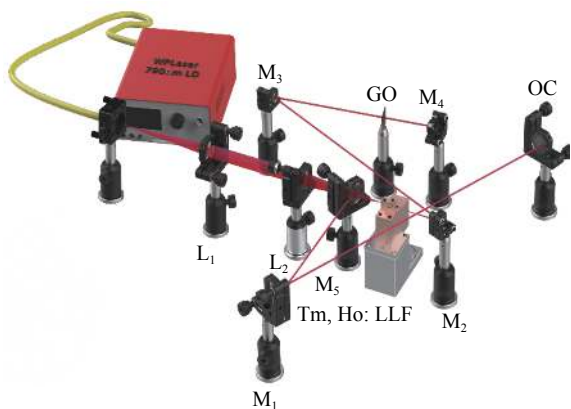


图 1 氧化石墨烯作为可饱和吸收体的 Tm, Ho:LLF 激光器实验装置

Fig.1 Tm, Ho:LLF laser experimental device using graphene oxide as a saturable absorber

为 1 : 1 的焦距为 75 mm 的平凸透镜, 将其泵浦光束聚焦到增益介质中。在激光谐振腔中  $M_1$  和  $M_2$  为曲率半径  $R=300$  mm 的平凹镜, 镀膜对 790 nm 波段的抽运光高透, 对 1800~2100 nm 波段的振荡光反射率大于 99.9%。利用 ABCD 矩阵模拟激光腔内的振荡光斑大小, 考虑到高功率泵浦时增益介质中的热透镜效应, 模拟晶体中的束腰半径约为 206  $\mu\text{m}$ , 根据匹配理论可知, 当振荡光斑比泵浦光斑近似于 2 : 1 时可以达到最优的模式匹配, 因此, 实验中采用折叠镜  $M_1$  和  $M_2$  的曲率半径为 300 mm 时可以获得更好的模式匹配。饱和吸收体采用和陕西师范大学王勇刚组联合研发的 GO 作为锁模启动元件, GO 采用垂直生长法制备, 为了在 GO 表面获得较小光斑启动锁模运转,  $M_3$  的曲率半径为 300 mm, 利用 ABCD 矩阵腔软件计算 GO 表面光斑尺寸约为 145.2  $\mu\text{m}$ 。  $M_3$  表面光学镀膜对 1800~2100 nm 波长激光反射率大于 99.9%。  $M_4$  是表面光学镀膜对 1800~2050 nm 波段反射率大于 99.9% 的平面高反镜。  $M_5$  为 45° 平面泵浦镜, 其两面均有光学镀膜, 一面对抽运光高透, 即对 790 nm 波段的抽运光的透过率大于 99.9%, 另一面对振荡光高反, 即对 1800~2100 nm 的振荡光反射率大于 99.9%。 OC 为输出耦合镜 (Output Coupler, OC), 为了研究激光器的输出特性以及最佳透过率, 实验中分别使用 3%、5% 和 9% 透过率的 OC 来进行对比分析。

## 2 实验结果分析与讨论

按照上述 Tm, Ho:LLF 激光器实验装置进行设计

并搭建光路, 当腔内没有激光运转时, 晶体对泵浦光的吸收效率约为 33.7%, 当有激光运转时, 且氧化石墨烯没有插入谐振腔内, 晶体的吸收效率约为 59.48%。而在腔内插入可饱和吸收体时, 晶体的吸收率略有变化, 在透过率为 3% 的输出耦合镜下, 晶体的吸收效率约为 53.8%, 输出耦合镜透过率为 5% 时, 晶体吸收率约为 53.6%。经过分析得知, 这是由于腔内插入氧化石墨烯可饱和吸收体增加了腔内损耗, 从而导致晶体的吸收效率降低。 Tm, Ho:LLF 激光器连续运转下输出功率与泵浦功率变化的关系如图 2 所示。当输出耦合镜的透过率分别为 3%、5% 和 9% 时, 输出激光的阈值分别为 2.3 W、2.4 W 和 2.6 W, 倾斜斜率分别为 5.63%、9.08% 和 10.76%。当泵功率为 20 W 时, 最大连续光输出功率为 954 mW、1 522 mW 和 1 793 mW。

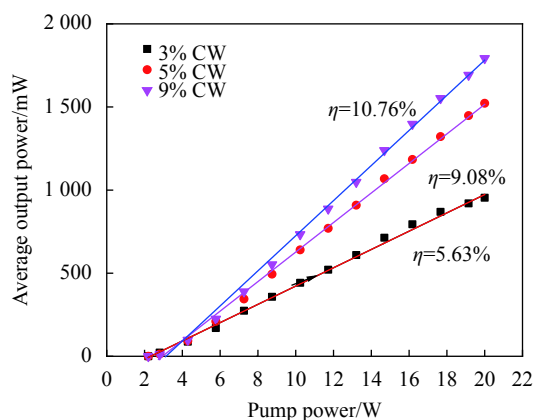


图 2 连续光输出功率随泵浦功率变化图

Fig.2 Relationship between continuous optical output power and pump power

为了选择最佳输出镜透过率, 进行了理论模拟。谐振腔最佳透过率与泵浦功率之间的关系如公式 (1) 所示:

$$T = \sqrt{\frac{4\sigma\tau_f\lambda_p P_{in} [1 - \exp(-\alpha_p L)] \times \delta_0}{\pi h c (W_p^2 + W_0^2)}} - \delta_0 \quad (1)$$

式中:  $\sigma$  为晶体发射截面;  $\tau_f$  为发射寿命;  $\lambda_p$  为泵浦光波长;  $P_{in}$  为泵浦功率;  $\alpha_p$  为吸收系数;  $L$  为晶体长度;  $\delta_0$  为腔内损耗;  $W_p$  为平均泵浦光斑半径;  $W_0$  为振荡光斑半径。

通过 MATLAB 软件模拟计算公式 (1) 得到的曲线如图 3 所示。可以看出, 在泵浦功率为 20 W 时, 谐振腔的最佳透过率  $T=0.0896$ , 所以选取透过率为

0.09 的输出镜较为合适,同时在连续光实验下,透过率为 9% 的 OC 输出功率最高,理论与实验结果相符合。因此,下面主要在透过率为 9% 的输出耦合镜下进行研究调 Q 以及调 Q 锁模实验,这样就可以在进行调 Q 锁模实验时得到较高的调 Q 锁模激光。

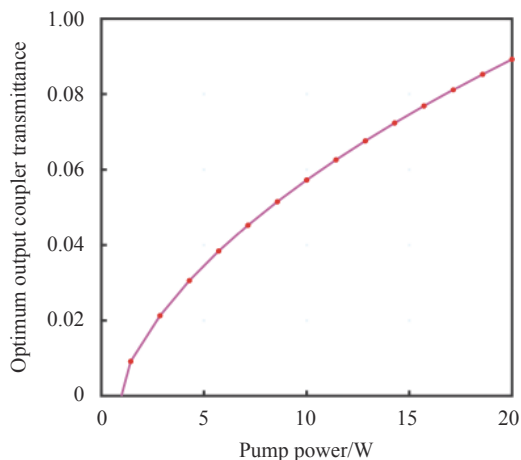


图 3 谐振腔最佳透过率随泵浦功率变化图

Fig.3 Relationship between the best transmittance of the resonant cavity and the pump power

当在腔内插入 GO-SA 后,透过率为 9% 的输出耦合镜下的出光阈值增加到 2.5 W,当泵浦光功率高于 5 W 时,激光进入调 Q 运转状态,且在示波器中没有观察到寄生脉冲。随着泵浦功率的提高,调 Q 包络的脉冲宽度变得越来越窄,脉冲重复频率变得越来越高,调 Q 脉冲重复频率和脉冲宽度随泵浦功率的变化如图 4 所示。可以看出,当抽运功率从 5 W 增加到

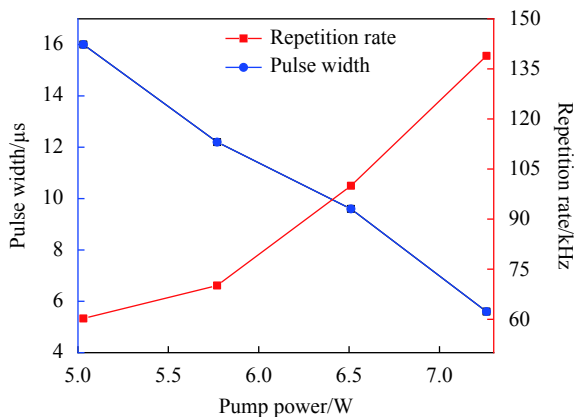


图 4 调 Q 的脉冲重复频率和脉冲持续时间与吸收的泵浦功率的变化关系

Fig.4 Q-switched pulse repetition rate and pulse duration versus the absorbed pump power

7.25 W 时,调 Q 脉冲重复频率从 60 kHz 增加到 139 kHz,相应地脉冲宽度从 16.3  $\mu$ s 减小到 5.5  $\mu$ s。

继续增加泵浦光,腔内功率密度逐渐增大,并且仔细调节氧化石墨烯可饱和吸收体到 M3 的距离,随后激光器进入调稳定的 Q 锁模运转。当泵浦功率达到 20 W 时,在透过率为 9% 的输出镜下锁模运转的最高输出功率为 1052 mW,斜效率为 5.1%,且没有发现 GO 表面发生损伤。输出功率与泵浦功率关系如图 5 所示。

实验采用透过率为 9% 的输出耦合镜,当泵浦功率为 10 W、输出功率为 433 mW 时,通过使用光谱分析仪 (AvaSpec-NIR 256-2.5 TEC) 获得调 Q 锁模脉冲光谱,如图 6 所示。输出脉冲信号的中心波长为 1 895 nm,光谱的半高宽  $\Delta\lambda$  为 15 nm。随着功率的提升以及脉冲宽度的变窄,并没有观察到激光器的输出光谱发生

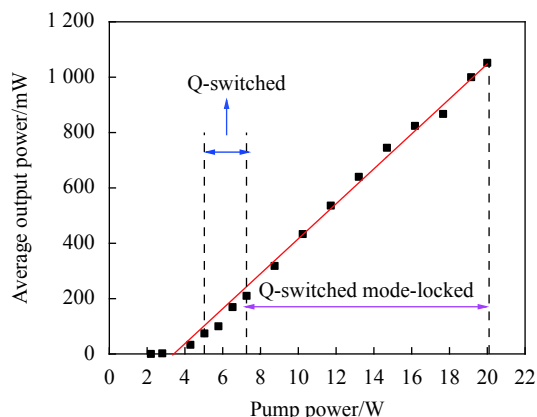


图 5 加入 GO-SA 后 Tm,Ho:LLF 激光器输出功率随泵浦功率变化  
Fig.5 After adding GO-SA, Tm, Ho: LLF laser output power changes with pump power

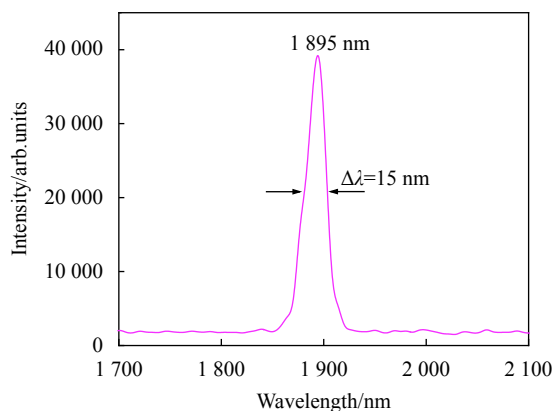


图 6 锁模光谱图

Fig.6 Mode-locked spectrogram

明显漂移,其保持在 1 895 nm。

图 7 所示是由快速光电二极管 (ET-500) 连接的数字示波器 (RIGOL, DS4034) 测量出的脉冲序列, 获得该图的实验条件与图 6 相同。扫描时间分别为 1 ms/div(上) 和 10 ns/div(下) 时所获得调 Q 锁模脉冲序列, 根据扫描时间为 1 ms/div 的脉冲示波图可以看出其为调 Q 包络, 由扫描时间为 10 ns/div 的脉冲序列图可以看出两个脉冲序列之间的间隔为 10 ns, 其为调 Q 包络下的锁模脉冲序列, 经计算可知其与实验中所用的 2819 mm 腔长相匹配。调 Q 包络下锁模脉冲的重复频率为 53.19 MHz, 分析调 Q 包络脉冲的锁模脉冲, 调制深度接近 100%。实验中激光器稳定运行, 调 Q 锁模运转的最大单脉冲能量为 19.77 nJ。



图 7 锁模脉冲序列

Fig.7 Mode-locked pulse trains

调 Q 脉冲无法用自相关仪测量,但是根据理论可以估算脉冲宽度,根据公式 (2)(其中  $t_m$  为被测脉冲序列的上升沿时间,  $t_r$  为实际锁模脉冲序列上升沿时间,  $t_p$  为光电探测器上升沿时间,  $t_o$  为示波器的上升沿时间), 实验中实际所测锁模脉冲的上升沿时间约为 1 910 ps, 光电探测器上升沿时间约为 35 ps。再由公式 (3)(其中  $W_B$  是实验中所用示波器带宽为 200 MHz) 估算实验的  $t_o$  约为 1 750 ps, 联合公式 (2) 和 (3) 可以

计算实验中所测脉冲的上升沿约为 764 ps, 又由于锁模脉冲的实际宽度是上升沿的 1.25 倍, 因此实际锁模脉冲约为 955 ps, 在后期的工作中, 将通过提高抽运功率获得更优质氧化石墨烯可饱和吸收体和降低吸收体的损耗, 进一步降低锁模脉冲宽度, 提升输出功率<sup>[16-17]</sup>。

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

$$t_o \times W_B = 0.35 \sim 0.4 \quad (3)$$

### 3 结 论

综上所述, 采用与 LD 泵浦光斑相匹配的大腔模“X”型五镜腔设计, 在 Tm,Ho:LLF 激光器中加入 GO 可饱和吸收体实现稳定调 Q 锁模运转。在透过率为 9% 的输出耦合镜下, 连续光最高输出功率为 1793 mW, 斜率效率为 10.76%。在谐振腔内加入 GO 可饱和吸收体后, 当泵浦光功率大于 7.26 W 时, 激光进入稳定的调 Q 锁模状态。当泵功率达到 20 W 时, 稳定调 Q 锁模运转下最高输出功率达到 1 052 mW, 斜效率为 6.42%, 调 Q 包络的锁模脉冲调制深度约为 100%。调 Q 锁模下的典型中心波长为 1 895 nm, 重复频率为 53.19 MHz, 最大平均单脉冲能量为 19.77 nJ。据笔者所知这是 2 μm 波段锁模的最高单脉冲能量记录。结果表明氧化石墨烯在高功率高单脉冲能量中红外波段激光器锁模中具有潜在的应用优势。

### 参考文献:

- [1] Zheng Li, Wang Huibo, Tian Wenlong, et al. LD-pumped high-repetition-rate all-solid-state femtosecond lasers (Invited) [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2020, 49(12): 20201069. (in Chinese)
- [2] Zhang Guodong, Cheng Guanghua, Zhang Wei. Progress in ultrafast laser space-selective welding [J]. *Chinese Optics*, 2020, 13(6): 1209-1223. (in Chinese)
- [3] Qiao Liang, Hou Xia, Chen Weibiao, et al. High pulse power 2 μm ring laser [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2009, 36(6): 1327-1331. (in Chinese)
- [4] Zhang Xinlu, Yu Long, Zhang Su, et al. Diode-pumped continuous wave and passively Q-switched Tm, Ho: LLF laser at 2 μm [J]. *Optics Express*, 2013, 21(10): 12629-12634.
- [5] Li Jingzhao, Chen Zhenqiang, Zhu Siqi. Passively Q-switched

- laser with a Yb: YAG/Cr<sup>4+</sup>: YAG/YAG composite crystal [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2018, 26(1): 55-61. (in Chinese)
- [6] Kong L, Xie G, Qin Z, et al. Diode-pumped mode-locked femtosecond 2 μm Tm: CaYAlO<sub>4</sub> laser[J]. *arXiv preprint arXiv*, 2017: 1707. 03818.
- [7] Feng Dejun, Huang Wenyu, Ji Pengyu, et al. Erbium-doped fiber ring cavity pulsed laser based on graphene saturable absorber [J]. *Optics & Precision Engineering*, 2013, 21(5): 1097-1101. (in Chinese)
- [8] Lee J, Lee J H. A passively Q-switched holmium-doped fiber laser with graphene oxide at 2058 nm [J]. *Applied Sciences*, 2021, 11(1): 407.
- [9] Kawase H, Uehara H, Chen H, et al. Passively Q-switched 2.9 μm Er:YAP single crystal laser using graphene saturable absorber [J]. *Applied Physics Express*, 2019, 12(10): 102006.
- [10] Sun R, Ling W J, Chen C. Tm, Ho: CaYAlO<sub>4</sub> laser operating at 2 089 nm [J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 2020, 41(3): 301-307. (in Chinese)
- [11] Ma J, Xie G Q, Lv P, et al. Graphene mode-locked femtosecond laser at 2 μm wavelength [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(11): 2085-2087.
- [12] Ma J, Xie G, Zhang J, et al. Passively mode-locked Tm: YAG ceramic laser based on graphene [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2014, 21(1): 50-55.
- [13] Wang Y, Chen W, Mark M, et al. Sub-100fs Tm:MgWO<sub>4</sub> laser at 2017 nm mode locked by a graphene saturable absorber [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(16): 3076-3079.
- [14] Chen Chen, Xu Qiang, Sun Rui, et al. Q-switched mode-locked all-solid-state Tm:LuAG ceramic laser [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2021, 50(4): 20190563. (in Chinese)
- [15] Walsh B M, Barnes N P, Petros M, et al. Spectroscopy and modeling of solid state lanthanide lasers: Application to trivalent Tm<sup>3+</sup> and Ho<sup>3+</sup> in YLiF<sub>4</sub> and LuLiF<sub>4</sub> [J]. *Journal of Applied Physics*, 2004, 95(7): 3255-3271.
- [16] Sun Rui, Chen Chen, Ling Weijun, et al. Watt-level Q-switched mode-locked Tm:LuAG laser based on graphene oxide [J]. *Acta Physica Sinica*, 2019, 68(10): 104207. (in Chinese)
- [17] Xu Fei, Pan Qikun, Chen Fei, et al. Development progress of Fe<sup>2+</sup>:ZnSe lasers [J]. *Chinese Optics*, 2021, 14(3): 458-469. (in Chinese)