

# 基于黑磷可饱和吸收体的 Nd:YVO<sub>4</sub> 锁模激光器的研究<sup>①</sup>

王贝贝 高丛丛 王国菊 王文军 张丙元

(聊城大学 物理科学与信息工程学院, 山东省光通信科学与技术重点实验室, 山东 聊城 252059)

**摘要** 采用液相剥离方法成功制备了黑磷可饱和吸收体,在 Nd:YVO<sub>4</sub>激光器中实现了连续锁模运转.在中心波长为 1064.13 nm 处,获得脉冲宽度为 5.7 ps、重复频率为 91.5 MHz 的锁模脉冲.在 2.5 W 的吸收泵浦功率下,激光器输出功率为 300 mW,相应斜效率 14%.锁模激光单脉冲能量为 3.28 nJ,峰值功率为 525 W.

**关键词** 连续锁模;黑磷;可饱和吸收体;Nd:YVO<sub>4</sub>

**中图分类号** TN248

**文献标识码** A

## 0 引言

超快激光以其高功率、超短脉冲宽度、宽带光谱等优点广泛应用于光谱学、生物医学和材料加工等领域<sup>[1-3]</sup>.作为产生超快激光的重要组件,可饱和吸收体(SA)也经历了快速发展.特别是利用石墨烯和过渡金属硫化物(TMD)等新兴的二维(2D)纳米材料制备的可饱和吸收体,具有恢复时间快、制造方法简单等优点,引起了研究人员的极大关注.但石墨烯零带隙结构对光子有相对较弱的吸收(每层 2.3%),导致低的光调制深度,使得在光电器件的应用中受到限制<sup>[4]</sup>.MoS<sub>2</sub>、WS<sub>2</sub>等过渡金属硫化物具有相对较大的带隙(MoS<sub>2</sub>为 1.8 eV,WS<sub>2</sub>为 2.1 eV),光学响应主要发生在接近或在可见光范围内<sup>[5]</sup>.自 2014 年张远波等人首次利用机械剥离法获得少层黑磷烯后,黑磷材料成为了人们研究的热点<sup>[6]</sup>.黑磷是磷单质在常压下最稳定的同素异形体,有着随层数可调谐的直接带隙.黑磷的出现填补了石墨烯(零带隙)和过渡金属硫化物(可见光/近红外带隙)之间的空白,可以实现从近红外到可见光不同波段的光吸收. Hanlon 团队利用 Z 扫描技术对黑磷的可饱和吸收特性进行了研究,发现黑磷在 515 nm 和 1 030 nm 处有着明显的饱和吸收效应<sup>[7]</sup>.深圳大学在对黑磷可饱和吸收特性测试时,发现黑磷纳米片在 400 nm、800 nm、1 563 nm、1 930 nm 处均有明显的饱和吸收特性<sup>[8]</sup>.此外黑磷有着优异的面内各向异性物理性能以及高的空穴迁移率,这使它成为光电子应用的有力候选者<sup>[9,10]</sup>.2014 年 Liu Han 等人对黑磷烯的光学性质进行了研究,发现黑磷烯与其他二维材料相比具有更优异的光电效能<sup>[11]</sup>.黑磷层与层之间较弱的范德华力使得它更容易被制作成可饱和吸收体.2014 年 Brent J R 等人利用液相剥离法制备了黑磷可饱和吸收体<sup>[12]</sup>.近几年来,利用黑磷作为可饱和吸收体的光纤及固体激光器纷纷报道.2015 年 Zhang Baitao 等人利用黑磷作为可饱和吸收体在 Nd:YVO<sub>4</sub>激光器中实现了 6.1 ps 脉冲激光输出<sup>[4]</sup>.2015 年 Ma Jie 等人在基于黑磷可饱和吸收镜(BP SAM)的 Yb:CaYAlO<sub>4</sub>激光器中获得了脉冲宽度为 620 ns 的调 Q 脉冲,证实了黑磷可

<sup>①</sup> 收稿日期:2017-12-10

基金项目:国家重点研发计划(2016YFB0402105);国家自然科学基金资助课题(61775089)和山东泰山学者特别建设项目基金资助

通讯作者:张丙元,男,汉族,博士,教授,研究方向:激光技术及应用,E-mail:zhangbingyuan@lcu.edu.cn.

饱和吸收镜在超快光子学应用中良好的前景<sup>[13]</sup>. 2016 年 Xu Yanhua 等人利用黑磷量子点作为可饱和吸收体在被动锁模光纤激光器中获得了中心波长为 1 567.5 nm, 脉冲宽度为 1.08 ps 的锁模脉冲<sup>[14]</sup>. 2017 年 Li Chun 等人利用黑磷作为可饱和吸收体在 Er:CaF<sub>2</sub> 激光器中实现了 2.8 μm 的调 Q 脉冲输出, 揭示了黑磷作为可饱和吸收体在中红外波段的应用前景<sup>[15]</sup>.

目前研究主要是利用黑磷饱和吸收体在光纤激光器实现连续锁模, 而在固体激光器中实现连续锁模的报到较少. 为了探索黑磷饱和吸收体在固体锁模激光器中的应用, 本文采用液相剥离方法成功制备了黑磷可饱和吸收体, 并利用黑磷可饱和吸收体实现了 Nd:YVO<sub>4</sub> 激光器的连续锁模运转, 获得了脉冲宽度为 5.7 ps 的锁模脉冲, 平均输出功率达 300 mW.

## 1 黑磷可饱和吸收体的制备

利用液相剥离法成功制备了黑磷可饱和吸收体. 具体操作步骤: 首先将丙酮和无水乙醇按 1:2 的比例配成清洗液; 将厚度为 1 mm, 横截面为 20 mm×10 mm 的石英片放入清洗液中超声 30 min, 取出干燥; 然后研磨块状黑磷(见图 1 中插图 A) 获得黑磷粉末, 将黑磷粉末放入异丙醇中水浴超声 3 h; 将超声后的黑磷试剂以 1 500 rpm 速度离心 20 min; 取离心后的上层液再次离心, 离心完以后可以在下层得到含有较大尺寸黑磷的分散液(见图 1 中插图 B). 将离心后的分散液滴在石英片上, 并在室温下真空干燥 24 h. 待石英片干燥后, 取出石英片并放在无水乙醇中超声 3 min, 除去异丙醇; 于是就得到了所需的可饱和吸收体. 图 1 为制备的黑磷可饱和吸收体的紫外-可见透射谱. 图 2 为黑磷可饱和吸收体分散液的拉曼光谱图. 从图中可以看到三个明显的特征峰: A<sub>g</sub><sup>1</sup> 峰位于 360.7 cm<sup>-1</sup> 处, B<sub>2g</sub>、A<sub>g</sub><sup>2</sup> 峰分别位于 440.6 cm<sup>-1</sup>、466.8 cm<sup>-1</sup> 处.

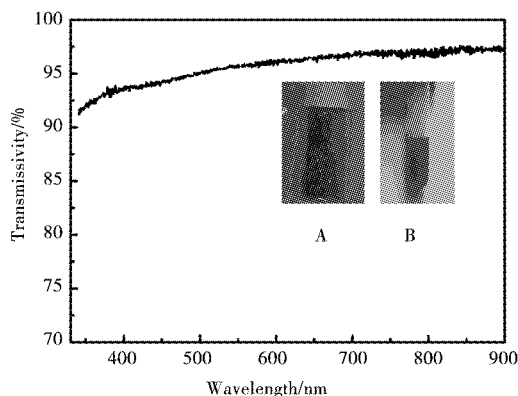


图 1 黑磷可饱和吸收体的紫外-可见透射谱  
插图: A 黑磷块体图, B 黑磷分散液图.

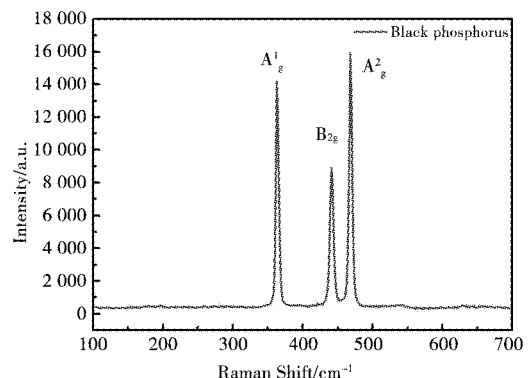


图 2 黑磷可饱和吸收体分散液的拉曼光谱

## 2 锁模实验装置

图 3 为基于黑磷可饱和吸收体的 Nd:YVO<sub>4</sub> 激光器锁模实验装置. 实验中采用了端面泵浦的 Z 型折叠腔, 腔长为 1.5 m. 端面泵浦有以下优点: 较好的模式匹配、阈值低、输出效率高、容易实现基模运转、光束质量好. 泵浦源为 808 nm 光纤耦合半导体激光器, 其纤芯直径为 400 μm, 数值孔径为 0.22. 泵浦光束通过耦合光学系统准直并聚焦到 Nd:YVO<sub>4</sub> 晶体

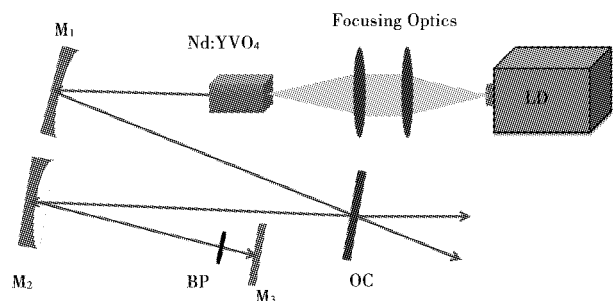


图 3 锁模实验装置图

中. 系统采用的 Nd:YVO<sub>4</sub> 晶体长为 5 mm, 横截面为 3 mm×3 mm. 晶体表面镀有 808 nm 高透、1 064 nm 高反的光学薄膜, 四周用铝箔包裹, 晶体座通 22℃ 的水冷却. 图中 M<sub>1</sub>、M<sub>2</sub> 为曲率半径为 400 mm 的凹面镜. 输出镜 OC 为平面镜, 对 1 064 nm 激光的透过率为 1.5%. M<sub>3</sub> 为全反镜, 镀有 1 064 nm 高反的光学薄

膜. 实验过程中通过更换不同焦距的凹面镜( $M_2$ )以及调节凹面镜( $M_2$ )和黑磷可饱和吸收体之间的距离, 来改变入射到可饱和吸收体上的光功率密度. 通过改变输出镜的入射角度以获得最佳输出. 实验中利用快速光电管(ET-3000, 上升沿时间为 175 ps)和示波器(Agilent DSO54832b, 带宽为 1 GHz, 采样率为 4 GSa/s)记录脉冲序列和单脉冲波形, 利用激光功率计(LP-3C)记录激光器的输出功率.

### 3 实验结果及分析

首先调整腔镜及晶体的位置, 实现激光器连续运转. 然后插入黑磷可饱和吸收体. 微调黑磷可饱和吸收体位置, 在吸收泵浦功率为 1.8 W 时实现了激光器连续锁模运转, 相应的输出功率为 184.6 mW. 在实验过程中 Nd:YVO<sub>4</sub> 晶体吸收效率约为 75%. 图 4 给出了激光器输出功率随吸收泵浦功率的变化曲线. 为了保护晶体及可饱和吸收体免受损坏, 将吸收泵浦功率限制在 2.5 W. 从图中可以看出, 在吸收泵浦功率为 2.5 W 时, 激光器连续锁模运转的最大输出功率为 300 mW, 斜效率为 14%. 实验过程中没有发现泵浦饱和, 说明输出功率可随泵浦功率的增加而继续增大. 表 1 列举了近年来黑磷作为可饱和吸收体在调 Q 及锁模激光器中的应用. 从中可以看出黑磷有着较高的损伤阈值, 为高功率激光输出奠定了基础.

表 1 黑磷可饱和吸收体在调 Q 及锁模激光器中应用

年份	晶体	激光模式	吸收泵浦功率/W	输出功率/mW	脉冲宽度	光谱/nm	斜效率/%	参考文献
2015	Nd:YVO <sub>4</sub>	连续锁模	3.61	460	6.1 ps	1 064.1	14	[4]
2016	Yb, Lu:CALGO	连续锁模	8.5	820	272 fs	1 053.4	12.6	[16]
2016	Nd:GGG	调 Q	4	135	321 ns	1062	4.8	[17]
2017	Nd:GdVO <sub>4</sub>	连续锁模	2.62	350	9.42 ps	1 340.7	15	[18]
2018	Er:CaF <sub>2</sub>	调 Q	2.35	178	954.8 ns	2 793.8	11.8	[15]

如图 5 所示, 利用光谱分析仪(Yokogawa AQ6370D, 分辨率 0.01 nm)对输出光谱进行了测量. 从图中可以看出, 激光器连续锁模运转时的振荡谱线位于 1 064.13 nm 处, 光谱线宽 0.95 nm. 图 6 (a)、6 (b) 分别为 1  $\mu$ s/div、10 ns/div 下的锁模脉冲序列. 实验过程中, 通过示波器观察到的锁模运转非常稳定, 脉冲抖动很小.

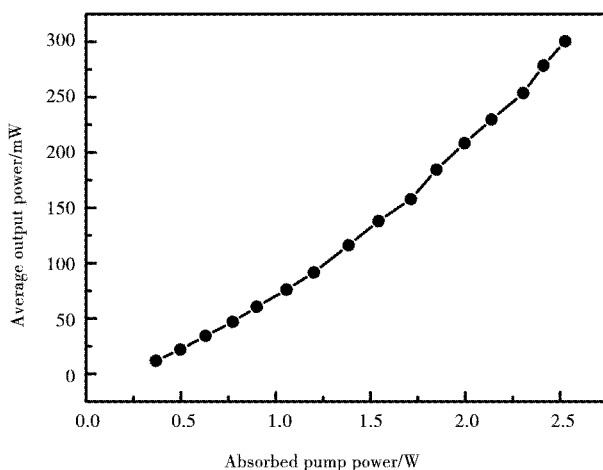


图 4 吸收泵浦功率与输出功率的关系

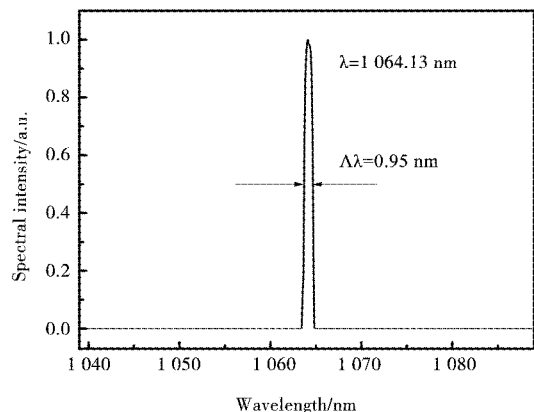


图 5 锁模运转时的输出光谱

利用脉冲自相关仪(APE PWTRE CLECLK SM 60)对锁模脉冲宽度进行了测量, 得到了锁模脉冲宽度的自相关曲线, 如图 7 所示. 在高斯拟合下得到锁模脉冲宽度近似为 5.7 ps. 通过计算可知, 锁模激光单脉冲能量为 3.28 nJ, 相应的峰值功率为 575 W.

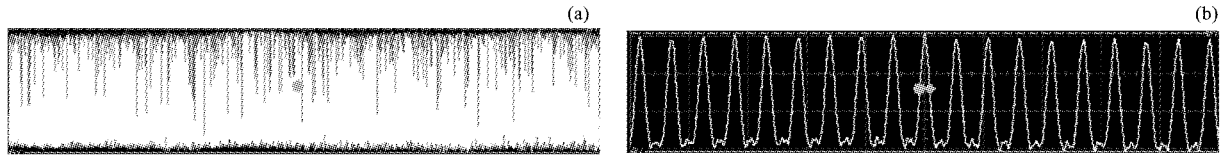


图 6 (a)锁模运转时脉冲序列(1  $\mu\text{s}/\text{div}$ );(b)锁模运转时脉冲序列(10 ns/div)

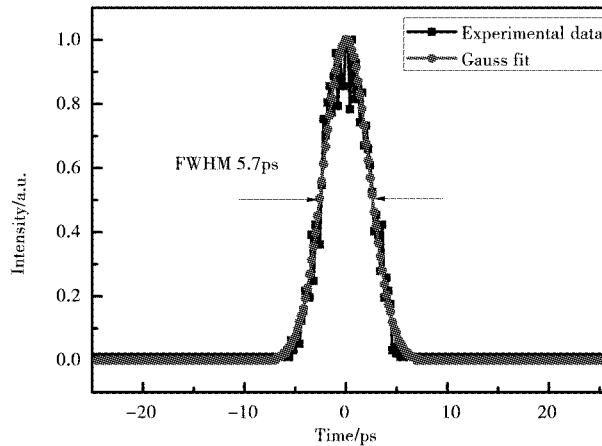


图 7 锁模脉冲自相关曲线

使用光束质量分析仪(Beam Profiler 2340 PS-2320A)对连续锁模运转下的输出光束进行了测量,如图 8 (a)、(b)所示.从输出激光的光束质量来看锁模脉冲的光斑形状为近似对称的圆形,光斑的能量分布呈现高斯分布.说明连续锁模运转下的激光器有着较好的输出模式.

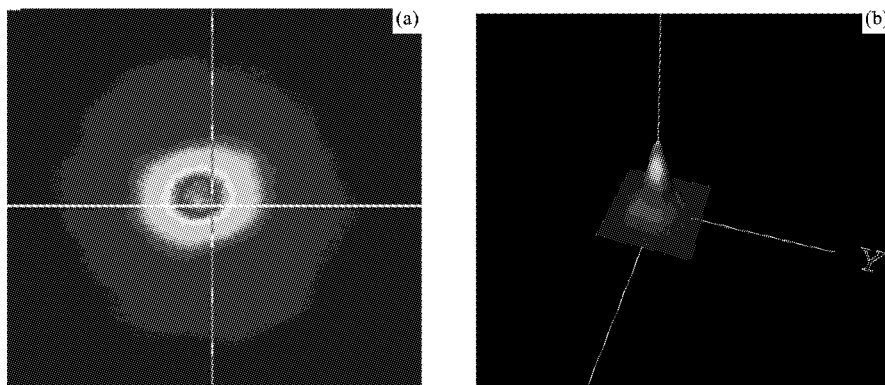


图 8 (a)锁模运转时激光光斑的二维平面图;(b)锁模运转时激光光斑分布的三维立体图

## 4 结论

综上所述,利用液相剥离法成功制备了黑磷可饱和吸收体,实现了 LD 端面泵浦 Nd:YVO<sub>4</sub> 全固态激光器的连续锁模运转.在 2.5 W 的吸收泵浦功率下,测得激光器输出功率为 300 mW、斜效率为 14%,并获得了重复频率为 91.5 MHz、脉冲宽度为 5.7 ps 的连续锁模脉冲,对应的单脉冲能量为 3.28 nJ、峰值功率为 575 W.实验表明黑磷可饱和吸收体在超快激光的产生中有着巨大的潜力,后期我们将会优化可饱和吸收体的参数,以此获得脉冲宽度更窄、单脉冲能量更高的锁模激光.

## 参 考 文 献

- [1] Khurmi C, Hébert N B, Zhang W Q, et al. Ultrafast pulse generation in a mode-locked Erbium chip waveguide laser[J]. Optics Express, 2016, 24(24):27177.
- [2] Iijima K, Kariyama R, Tanaka H, et al. Pr<sup>3+</sup>:YLF mode-locked laser at 640 nm directly pumped by InGaN-diode lasers[J]. Applied Optics, 2016, 55(28):7782-7787.

- [3] Ma J, Xie G Q, Lv P, et al. Graphene mode-locked femtosecond laser at 2  $\mu\text{m}$  wavelength[J]. Optics Letters, 2012, 37(11):2085-2087.
- [4] Zhang Baitao, Lou Fei, Zhao Ruwei. Exfoliated layers of black phosphorus as saturable absorber for ultrafast solid-state laser[J]. Optics Letters, 2015, 40(16):3691-3694.
- [5] 姚宝权,张兴宝,王月珠,等. 光纤耦合二极管端泵 2 $\mu\text{m}$  CW 双掺 Tm, Ho:GdVO<sub>4</sub> 激光器[J]. 光子学报, 2005, 34(7):964-967.
- [6] Li L, Yu Y, Ye G J, et al. Black phosphorus field-effect transistors[J]. Nature Nanotechnology, 2014, 9(5):372-377.
- [7] Hanlon D, Backes C, Doherty E, et al. Liquid exfoliation of solvent-stabilized few-layer black phosphorus for applications beyond electronics[J]. Scientific Reports, 2015, 6:8563-8587.
- [8] Lu Shunbin, Miao Lili, Guo Zhinan. 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.
- [9] Wang Xiaomu, Aaron M Jones, Kyle L Seyler, et al. Highly Anisotropic and Robust Excitons in Monolayer Black Phosphorus[J]. Nature Nanotechnology, 2014 ,10(6):517-521.
- [10] Long Mingsheng ,Gao Anyuan ,Wang Peng ,et al. Room temperature high-detectivity mid-infrared photodetectors based on black arsenic phosphorus[J]. Science Advances, 2017, 3 (6) :e1700589.
- [11] Liu H, Neal A T, Zhu Z, et al. Phosphorene: an unexplored 2D semiconductor with a high hole mobility[J]. Acs Nano, 2014, 8 (4):4033-4041.
- [12] Brent J R, Savjani N, Lewis E A, et al. Production of Few-Layer Phosphorene by Liquid Exfoliation of Black Phosphorus[J]. Chemical Communications, 2014, 50(87):13338-13341.
- [13] Ma Jie, Lu Shunbin, Guo Zhinan, et al. Few-layer black phosphorus based saturable absorber mirror for pulsed solid-state lasers[J]. Opt Express, 2015, 23(17):22643-22648.
- [14] Xu Yanhua, Wang Zhiteng, Guo Zhinan, et al. Solvothermal Synthesis and Ultrafast Photonics of Black Phosphorus Quantum Dots [J]. Advanced Optical Materials, 2016, 4(8) :1223-1229.
- [15] Li C, Liu J, Guo Zhinan, et al. Black phosphorus saturable absorber for a diode-pumped passively Q-switched Er:CaF<sub>2</sub> mid-infrared laser[J]. Optics Communication, 2018, 406(1):158-162.
- [16] Su Xiancui, Wang Yiran, Zhang Baitao, et al. Femtosecond solid-state laser based on a few-layered black phosphorus saturable absorber[J]. Optics Letters, 2016, 41(9):1945-1948.
- [17] Han S, Zhang F, Wang M, et al. Black phosphorus based saturable absorber for Nd-ion doped pulsed solid state laser operation[J]. Indian Journal of Physics, 2016, 91(4):1-5.
- [18] Sun X, Nie H, He J, et al. Passively mode-locked 1.34  $\mu\text{m}$  bulk laser based on few-layer black phosphorus saturable absorber[J]. Optics Express, 2017, 25(17):20025-20032.

## Passively Mode-locked Nd:YVO<sub>4</sub> Laser Using Black Phosphorus as a Saturable Absorber

WANG Bei-bei GAO Cong-cong WANG Guo-ju WANG Wen-jun ZHANG Bing-yuan

(School of Physics and Information Engineering, Shandong Key Laboratory of Optical Communication Science and Technology, Liaocheng University, Liaocheng 252059, China)

**Abstract** A black phosphorous (BP) saturable absorber (SA) was fabricated by liquid phase exfoliation and employed to achieve passively mode-locked Nd:YVO<sub>4</sub> laser. Stable continuous wave mode-locked laser at 1 064.13 nm was realized with a pulse repetition rate of 91.5 MHz and a pulse width of 5.7 ps. A maximum output power of 300 mW was obtained under the absorbed pump power of 2.5 W, corresponding to the slope efficiency is 14%. The single pulse energy and peak power were calculated to be 3.28 nJ and 525 W, respectively.

**Key words** continuous wave mode-locked (CWML); black phosphorous; saturable absorber; Nd:YVO<sub>4</sub> laser