

2 μm 波段锁模固体激光研究进展

杨亚铃¹ 杨克建² 赵圣之¹ 郭磊¹ 张百涛² 王瑞华² 何京良²

(1. 山东大学 信息科学与工程学院, 山东 青岛 266237; 2. 山东大学 晶体材料国家重点实验室, 山东 济南 250100)

摘要 中红外 2 μm 波段锁模超快激光在工业、军事、环境、医疗和科研等领域有着广泛的应用。随着中红外波段固体激光材料和锁模器件的不断发展, 利用锁模技术直接产生 2 μm 波段固体超短脉冲激光成为有效的技术途径之一。本文综述了近十年来 2 μm 波段主动和被动锁模固体激光的研究进展, 针对激光材料、锁模器件等方面的进展情况进行了回顾, 并对未来 2 μm 波段锁模固体激光的发展前景进行了展望。

关键词 2 μm 超快激光; 锁模; 固体激光; 半导体泵浦

中图分类号 TN248.1

文献标识码 A

0 引言

作为中红外激光的起始波段, 2 μm 激光处在人眼安全波段和大气透射窗口, 在激光雷达、材料加工、环境监测、空间通信等应用和基础研究领域均具有重要的应用价值和前景^[1]。例如在非线性光学领域, 2 μm 波段激光是 3-5 μm 和 8-12 μm 中红外波段光学参量振荡器(Optical parametric oscillators, OPOs)的理想泵浦源^[2]。目前, 产生 2 μm 波段中红外激光有两种技术途径。一种是间接方式, 即 OPOs 技术, 主要是利用 Nd^{3+} 或 Yb^{3+} 离子掺杂的 1 μm 激光器泵浦铌酸锂(LN)、磷酸钛氧钾(KTP)等氧化物非线性晶体获得; 另一种是利用大功率半导体激光直接泵浦 Tm^{3+} 、 Ho^{3+} 离子掺杂的固体激光介质产生, 主要包括石榴石、铝酸盐、硅酸盐、钨酸盐、氟化物、倍半氧化物等晶体和陶瓷。近年来, 随着低维纳米结构光学材料和量子阱结构半导体锁模器件的不断发展, 利用新型锁模器件直接产生 2 μm 波段超快激光成为激光领域的研究热点之一。

早在上世纪九十年代人们就已经开始 2 μm 锁模固体激光器的研究。例如 1992 年, 美国海军实验室的 Pionto 等人采用声光(Acousto-optic, AO)调制的方法, 首次实现了主动锁模 $\text{Tm}:\text{YAG}$ 激光输出^[3]。此后, 声光调制器成为 2 μm 波段主动锁模的常用手段, 但是主动锁模器件的响应时间较长, 其产生的脉冲宽度一般都在皮秒量级。为了实现飞秒脉冲输出, 通常采用被动锁模技术, 包括克尔透镜锁模和可饱和吸收体锁模。由于 2 μm 波段激光介质弱的克尔效应, 直到最近人们才利用 Tm^{3+} 、 Ho^{3+} 掺杂激光介质成功实现了克尔透镜锁模。2017 年, Zhang 等人 $\text{Ho}:\text{YAG}$ 薄片激光器中获得了 2.1 μm 波段的克尔透镜锁模激光输出, 脉冲宽度为 220 fs, 输出功率为 20 W^[4]。同年, 日本的 Tokurakawa 等人利用 1611 nm $\text{Er}:\text{Yb}$ 光纤主振荡器功率放大器带内泵浦 $\text{Tm}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ 晶体实现了克尔透镜锁模激光运转, 脉冲宽度为 166 fs, 平均输出功率 440 mW, 这是首次在 Tm^{3+} 掺杂固体激光器中实现克尔透镜锁模^[5]。利用克尔透镜锁模虽然有利于获得超短脉冲激光, 但是其对谐振腔的设计要求较高, 泵浦源通常采用高光束质量的光纤或单模半导体激光, 而且很难实现自启动, 在实际使用中受到诸多限制。

而基于非线性可饱和吸收体的被动锁模技术具有结构简单、自启动、效率高等优点, 是当前获得超短脉冲激光的重要手段。然而, 由于缺乏合适带隙的非线性光学材料, 基于饱和吸收锁模的 2 μm 超快固体激光直到近十年前才取得了重要进展。2009 年, 德国马克思·波恩研究所的 Cho 等人首次利用单壁碳纳米管

收稿日期: 2018-10-30

基金项目: 国家自然科学基金项目(61475088); 山东省重点研发计划(2018GGX101006)资助

通讯作者: 杨克建, 男, 汉族, 博士, 教授, 研究方向: 激光物理与技术、光电材料与器件, E-mail: k.j.yang@sdu.edu.cn.

(Single-walled carbon nanotubes, SWCNTs) 实现了钛宝石激光泵浦 $\text{Tm:KLu(WO}_4)_2$ 晶体被动锁模超快激光运转, 获得了脉宽 9.7 ps 的稳定锁模脉冲^[6]; 随后, 英国圣安德鲁斯大学 Lagatsky 等人采用带间跃迁 (Interband Transitions, IBTs) InGaAsSb 量子阱半导体可饱和吸收镜 (Semiconductor saturated absorption mirror, SESAMs) 作为锁模器件实现了 $\text{Tm, Ho:KY(WO}_4)_2$ 晶体在 2 μm 波段的超快激光运转, 脉冲宽度为 3.3 ps^[7]. 2010 年, 德国康斯坦茨大学杨克建等人首次利用子带间跃迁 (Intersubband Transitions, ISBTs) InGaAs/AlAsSb 半导体量子阱锁模 Tm, Ho:YAG 晶体实现了波长 2096 nm 的 60 ps 脉冲激光输出^[8]. 此后, 基于饱和吸收被动锁模的 2 μm 波段固体超快激光得到了快速发展, 特别是新型宽带激光介质、饱和吸收锁模器件等不断涌现, 进一步加快了该领域的研究进展.

本文综述了近十年来 2 μm 波段锁模固体激光的研究进展, 针对激光材料、锁模器件等方面的进展情况进行了全面回顾, 对未来 2 μm 波段固体超快激光的发展前景进行了展望.

1 2 μm 稀土激活离子及其能级结构

2 μm 波段稀土激活离子主要有 Tm^{3+} 和 Ho^{3+} 离子, 由其构成的激光系统包括 Tm^{3+} 、 Ho^{3+} 以及 Tm^{3+} 、 Ho^{3+} 共掺系统, 各激活离子的能级结构和能级跃迁将在下面进行简单介绍.

1.1 Tm^{3+} 离子能级系统

Tm^{3+} 离子的能级结构如图 1 所示, 属于准三能级系统^[9], CR (Cross relaxation) 为交叉弛豫过程, UC1 (Up conversion) 和 UC2 为上转换过程, ESA (Excited state absorption) 为激发态吸收. Tm^{3+} 离子吸收 785 nm 左右的泵浦光, 发生 $^3\text{H}_6 \rightarrow ^3\text{H}_4$ 跃迁, 然后通过交叉弛豫过程使 $^3\text{F}_4$ 能级得到两个激发态离子, 最终由 $^3\text{F}_4 \rightarrow ^3\text{H}_6$ 能级跃迁产生 2 μm 波段激光, 因此 Tm^{3+} 离子激光系统理论上量子效率可以达到 200%.

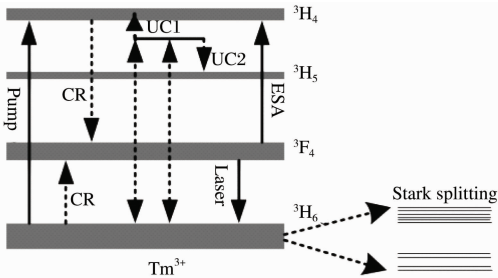


图 1 Tm^{3+} 离子的能级结构^[9]

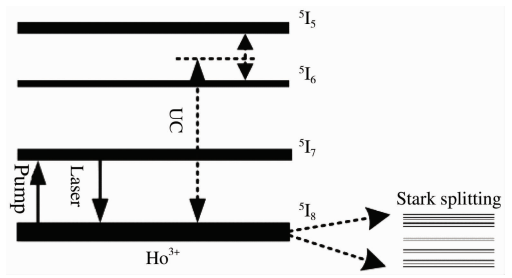


图 2 Ho^{3+} 离子的能级结构^[9]

1.2 Ho^{3+} 离子能级系统

Ho^{3+} 离子的能级结构如图 2 所示^[9], 基态 $^5\text{I}_8$ 和上能级 $^5\text{I}_7$ 都有很强的斯塔克 (Stark) 分裂, Ho^{3+} 离子吸收 1.9 μm 附近的泵浦光发生 $^5\text{I}_8 \rightarrow ^5\text{I}_7$ 跃迁, 然后在 $^5\text{I}_7$ 能级上粒子重新排列, 由 $^5\text{I}_7 \rightarrow ^5\text{I}_8$ 跃迁产生 2.1 μm 左右的激光输出, 其能级系统属于准二能级激光系统, 量子亏损小, 有利于激光器高效率运行.

1.3 Tm^{3+} 、 Ho^{3+} 共掺能级系统

Tm^{3+} 、 Ho^{3+} 共掺激光系统的能级结构如图 3 所示^[9], Tm^{3+} 离子吸收 785 nm 波长左右的泵浦光, 发生 $^3\text{H}_6 \rightarrow ^3\text{H}_4$ 跃迁, 然后通过交叉弛豫过程使 $^3\text{F}_4$ 能级被两个 Tm^{3+} 离子占据. 由于 Tm^{3+} 离子的 $^3\text{F}_4$ 能级与 Ho^{3+} 离子的 $^5\text{I}_7$ 能级比较接近, 通过能量共振转移 $\text{Tm}^{3+} \rightarrow \text{Ho}^{3+}$, 从而激发 Ho^{3+} 离子在 $^5\text{I}_7$ 能级聚集并实现粒子数反转, 由 Ho^{3+} 的 $^5\text{I}_7 \rightarrow ^5\text{I}_8$ 跃迁实现 2.1 μm

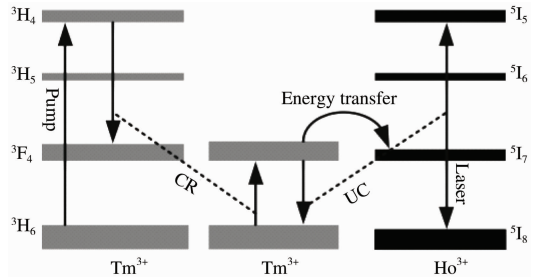


图 3 Tm^{3+} 、 Ho^{3+} 共掺的能级结构^[9]

左右激光输出. 由于在 $\text{Tm}^{3+} \rightarrow \text{Ho}^{3+}$ 能量传递中容易产生上转换损耗, 减少了 Ho^{3+} 离子激光上能级的粒子数, 大大提高了激光阈值, 这也导致了在早期 Tm^{3+} 、 Ho^{3+} 共掺激光系统只能在低温下实现激光输出.

2 2 μm 锁模固体激光介质

理想的超快基质材料应具有良好的物理、光学、热学及机械性能, 并具有宽荧光光谱、大增益系数、高损

伤阈值等特点,从而有利于产生高峰值功率的超短脉冲激光.目前,应用较为成熟的 $2\ \mu\text{m}$ 波段固体激光介质材料包括玻璃、晶体、陶瓷等.

2.1 激光玻璃

激光玻璃的优点是可以实现大尺寸生长,光学均匀性较好,并能够掺杂较高浓度的激活离子.由于激活离子缺乏结晶环境,使得玻璃中的荧光谱线宽通常比晶体中的宽,激光阈值比晶体的高.虽然激光玻璃的热导率($<1\ \text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)远低于绝大多数的激光晶体,但激光玻璃在 $2\ \mu\text{m}$ 波段锁模固体激光中也有成功的应用,例如圣安德鲁斯大学的 Fusari 等人利用 InGaAsSb 量子阱 SESAM 实现了 Tm 掺杂玻璃激光器的被动锁模激光运转,其中基于 Tm:GPNG 和 Tm,Ho:TZN 增益介质实现的锁模脉宽分别为 410 fs 和 630 fs^[10].

2.2 激光晶体

激光晶体在固体激光器中发挥着重要的作用,它的热导率较高、荧光谱线较窄、热效率低,高功率下激光器件不易损坏,较易实现高重复频率大功率运转,在实现锁模短脉冲激光输出方面也有优势.

2.2.1 石榴石晶体.石榴石晶体以镧铝石榴石($\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, LuAG)^[11,12] 和钇铝石榴石($\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, YAG)^[13] 为典型代表.例如, LuAG 具有比 YAG 更高的损伤阈值^[14],而且 Tm:YAG 的热导率随着 Tm^{3+} 离子浓度的增加而迅速下降.因此, Tm:LuAG 晶体成为实现高功率锁模激光的候选材料,如 2015 年,山东大学的冯天利等人 Tm:LuAG 晶体激光器中实现了瓦级的功率输出^[12].钙铈铋石榴石晶体($\text{Ca}_3\text{Li}_x\text{Nb}_{1.5-x}\text{Ga}_{3.5-2x}\text{O}_{12}$, CLNGG)更容易实现高掺杂以及大尺寸生长,由于晶体结构的无序性使得荧光光谱大大展宽.非常有利于产生飞秒量级的脉冲激光^[15-17].2012 年,上海交通大学的马杰等人基于 SESAM 可饱和吸收体在 Tm:CLNGG 晶体激光器上获得了脉宽为 479 fs 的锁模脉冲的输出^[15].随后,上海交通大学的谢国强等人将石墨烯用于 Tm:CLNGG 晶体激光器中成功实现了锁模输出,锁模的脉冲宽度为 729 fs,平均功率为 60.2 mW^[16].2018 年,马克思·波恩研究所的 Wang 等人利用 SWCNTs 实现了 Tm:CLNGG 晶体激光器在 2017 nm 处的锁模激光运转,获得的最短脉宽为 78 fs,平均功率 54 mW^[17].

2.2.2 铝酸盐晶体.铝酸盐晶体以铝酸钇(YAlO_3 , YAP)^[18,19] 为代表, YAP 晶体属于斜方晶系,在物化和机械性能方面与 YAG 相当^[20],但 YAP 晶体损伤阈值(约 $330\ \text{MW}/\text{cm}^2$)较低,在高功率运行时容易损伤.2013 年,德国康斯坦茨大学杨克建等人报道了 Tm, Ho:YAP 晶体激光器的 SESAM 锁模运转,最短脉冲宽 40.4 ps^[18].2015 年,山东大学侯佳等人实现了 Tm:YAP 晶体激光器的被动锁模激光运转,获得的脉冲宽度为 1.89 ps,最高平均输出功率为 710 mW^[19].最近,无序结构铝酸钪钙(CaGdAlO_4 , CALGO)^[21] 和铝酸钪钙(CaYAlO_4 , CALYO)^[22] 晶体作为锁模基质在实现超短脉冲激光方面展现出极大的优势.2015 年,马克思·波恩研究所的 Wang 等人实现了 Tm:CALGO 晶体的 SESAM 锁模,得到了波长为 2021 nm 的 650 fs 脉冲激光输出^[21].2018 年,马克思·波恩研究所 Zhao 等人采用啁啾镜作为色散补偿元件,实现了 Tm, Ho:CALYO 晶体激光器的被动锁模,产生短至 87 fs 的脉冲,这也是首次实现 $2\ \mu\text{m}$ 掺 Ho^{3+} 固体激光器锁模亚 100 fs 激光输出^[22].

2.2.3 倍半氧化物晶体.倍半氧化物晶体以倍半氧化镧(Lu_2O_3)^[23,24] 与倍半氧化钪(Sc_2O_3)^[25] 为代表.以 Lu_2O_3 晶体为例,其本身具有高热导率($12.5\ \text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$),而 Lu 原子与镧系稀土激活离子具有相近的原子质量,因此即使在 Lu_2O_3 基质中掺入高浓度的 Tm^{3+} 、 Ho^{3+} 等激活离子,也不会导致晶体热导率明显下降,但倍半氧化物晶体的熔点一般较高($>2400\ ^\circ\text{C}$),生长困难.目前,利用 Tm^{3+} 掺杂 Sc_2O_3 和 Lu_2O_3 晶体均已实现飞秒量级的超短激光脉冲输出^[23-25].例如马克思·波恩研究所的 Schmidt 等人利用 SWCNT 作为锁模器件,在 Tm: Lu_2O_3 晶体激光器中实现了脉宽 175 fs、平均输出功率 36 mW 的被动锁模运转^[23].

2.2.4 硅酸盐晶体.硅酸盐晶体包括硅酸钪(Sc_2SiO_5 , SSO)^[26] 以及硅酸钪镧(LuYSiO_5 , LYSO)^[27] 等晶体.硅酸盐晶体具有较低的对称性,因而晶体的声子能量较大,使得掺杂的激活离子能级劈裂大,有利于实现粒子数反转.2013 年,德国康斯坦茨大学杨克建等人利用 InGaAs 量子阱 SESAM 在 Tm:LYSO 晶体激光器中获得了最短脉宽为 19.6 ps、平均功率为 64.5 mW 的锁模脉冲激光输出^[27].2018 年, Xiao 等人首次报道了 Tm 光纤激光泵浦 Ho:SSO 晶体主动锁模激光,该激光器实现了最大输出功率为 2.72 W、脉冲宽度为

282.4 ps、脉冲重复频率为 81.88 MHz 的连续锁模脉冲激光^[26]。

2.2.5 氟化物晶体. 氟化物晶体属于四方晶系, 主要包括氟化钇锂(LiYF_4 , YLF)^[28-31]、氟化钪钇(GdLiF_4 , GLF)^[32]、氟化钇钡(BaY_2F_8 , BaYF)^[33]和氟化镱钪(LiLuF_4 , LuLF)^[34]等晶体. 氟化物晶体具有远紫外到中红外的宽波段光谱透射范围, 并且具有声子能量低、荧光寿命长等优点, 可有效降低非辐射跃迁几率, 有利于提高量子效率. 例如 2018 年, Tyazhev 等人采用 InGaAs 量子阱 SESAM 在 Tm:YLF 晶体激光器中实现了被动锁模脉冲输出, 平均功率为 95 mW, 脉冲宽度为 31 ps^[30]. 表 1 是 Tm³⁺、Ho³⁺ 掺杂氟化物晶体 2 μm 波段锁模固体激光研究进展情况。

表 1 2 μm 波段氟化物晶体锁模固体激光研究进展

激光晶体	锁模元件	平均功率/mW	脉冲宽度/ps	中心波长/nm	发表时间	参考文献
Tm:YLF	SWCNT	55	19	1888	2011	[28]
Tm:YLF	SESAM	165	94	2305.9	2017	[29]
Tm:YLF	InGaAs-SESAM	95	31	1909	2018	[30]
Ho:YLF	InGaAsSb-SESAM	580	1.1	2064	2011	[31]
Tm:GLF	InGaAs-SESAM	50	17	1886	2010	[32]
Tm:Ho:BaYF	AO 调制	20	97	2060	2003	[33]

2.2.6 钨酸盐晶体. 钨酸盐晶体属于单斜晶系双轴晶体, 其中双钨酸盐晶体以钨酸钪钾($(\text{KY}(\text{WO}_4)_2$, KYW)^[35]、钨酸镱钾($\text{KLu}(\text{WO}_4)_2$, KLuW)^[36-38]、钨酸钪钠($\text{NaY}(\text{WO}_4)_2$, NYW)^[39]为典型代表, 单钨酸盐晶体以钨酸镁(MgWO_4 , MgW)^[40]为代表. 由于激活离子的分凝系数较大, 容易在钨酸盐晶体内实现高浓度掺杂, 但晶体本身热导率较差, 易导致严重的热透镜效应, 一定程度上限制了输出功率的提升. 2010 年, 英国圣安德鲁斯大学的 Lagatsky 等人首次采用 Tm, Ho:NYW 晶体为增益介质, 在中心波长 2060 nm 处实现了 191 fs 的锁模脉冲激光的输出^[39]. 2017 年, 马克思-波恩研究所的 Wang 等人采用钛宝石激光起泵浦 Tm: MgW 晶体实现脉宽短至 86 fs 的锁模激光的运转, 这是基于石墨烯可饱和吸收体所获得的最短脉宽^[40]. 表 2 列出了 Tm³⁺、Ho³⁺ 掺杂钨酸盐晶体 2 μm 波段锁模固体激光研究进展情况。

表 2 钨酸盐晶体 2 μm 波段锁模固体激光的研究进展

激光晶体	锁模元件	平均功率/mW	脉冲宽度/fs	中心波长/nm	发表时间	参考文献
Tm, Ho:KYW	InGaAsSb-SESAM	315	3300	2057	2009	[7]
Tm, Ho:KYW	InGaAsSb-SESAM	130	570	2055	2010	[35]
Tm:KLuW	SWCNT	26	141	2037	2012	[36]
Tm, Ho:KLuW	SWCNT	97	2800	2060	2014	[37]
Tm, Ho:KLuW	InGaAsSb-SESAM	155	4000-8000	2060	2015	[38]
Tm, Ho:NYW	InGaAsSb-SESAM	82	191	2058	2010	[39]
Tm:MgW	Graphene	39	86	2017	2017	[40]

2.2.7 钒酸盐晶体. 钒酸盐晶体以钒酸钪(YVO_4)^[41]为代表, 这类晶体的荧光寿命比氟化物短, 但受激发射截面要比氟化物大得多, 所以荧光寿命 τ 和受激发射截面积 σ 的乘积与氟化物相当, 容易实现实现高重频窄脉宽的激光输出. 其次, 钒酸盐晶体激光器输出的激光为线偏振光, 可以消除高功率激光运行时的退偏振损耗. 哈尔滨工业大学的姚宝权等人利用 Tm, Ho:YVO₄ 晶体为激光介质实现了被动锁模脉冲激光的输出, 最大平均输出功率 151 mW, 脉冲宽度 10.5 ps^[41]。

2.3 激光陶瓷

激光陶瓷不仅具有与激光晶体类似的光学特性, 而且成本低、热导率高, 容易实现大尺寸制备和高浓度掺杂. 自 1964 年 Hatch 等人首次报道 Dy²⁺:CaF₂ 陶瓷激光以来^[42], 激光陶瓷逐渐受到人们的关注, 人们也在陶瓷介质中实现了超快脉冲激光输出. 2012 年, 英国圣安德鲁斯大学的 Alexander 等人采用 InGaAsSb 量子阱 SESAM, 实现了 Tm:Lu₂O₃ 陶瓷激光器的锁模脉冲输出, 获得的最短脉冲宽度为 180 fs, 平均输出功率为 400 mW^[43]. 2018 年, 马克思-波恩研究所的 Wang 等人基于 InGaAsSb 量子阱 SESAM 和用于色散补偿的啁啾镜, 采用钛宝石激光器泵浦 Tm:LuScO 陶瓷实现了锁模激光的输出, 在中心波长 2057 nm 处产生短

至 63 fs 的脉冲序列,这是目前 2 μm 波段固体锁模激光器的到的最短脉冲^[50].表 3 列出了 2 μm 波段 Tm³⁺、Ho³⁺ 掺杂激光陶瓷锁模固体激光的研究进展情况.

表 3 2 μm 波段激光陶瓷锁模固体激光器的研究进展

激光陶瓷	锁模元件	平均功率/mW	脉冲宽度/ps	中心波长/nm	发表时间	参考文献
Tm:Lu ₂ O ₃	InGaAsSb-SESAM	400	0.18	2076	2012	[43]
Tm:YAG	GaSb-SASEM	150	30	2012	2015	[44]
Tm:YAG	Graphene	158	2.8	2016	2015	[45]
Tm:YAG	GaInSb-SESAM	125	6.3	2012	2013	[46]
Tm:LuAG	GaSb-SESAM	232	2.7	2022	2017	[47]
Ho:YAG	AO 调制	1840	241.5	2122.1	2016	[48]
Ho:YAG	GaSb-SESAM	230	2.1	2064	2016	[49]
Tm:LuScO	InGaAsSb-SESAM	175	0.063	2057	2018	[50]

3 锁模器件

3.1 主动锁模器件

声光调制器是人们最早用于实现 2 μm 锁模激光的主动锁模器件.1992 年,Pinto 等人首先采用 786.5 nm 钛宝石激光器泵浦 Tm:YAG 晶体实现了主动锁模运转,获得了脉冲宽度为 35 ps、重复频率为 300 MHz、最大平均输出功率为 70 mW^[3].2015 年,Mužik 等人报道了激光二极管泵浦 Tm:YLF 晶体的主动锁模,获得了脉宽 170 ps、重复频率为 149.3 MHz 和 2.6 W 平均输出功率的脉冲输出^[51].随后,国内哈尔滨工业大学姚宝权课题组采用晶体和陶瓷等激光介质,基于 AO 调制的主动锁模获得了皮秒量级的 2 μm 脉冲激光输出.例如 2015 年,Cui 等人采用 1.91 μm 的 Tm³⁺ 光纤激光泵浦 Ho:LuAG 晶体实现了中心波长 2010.4 nm、最大输出功率 2.7 W、锁模脉宽 333.4 ps 的连续波锁模脉冲激光^[52].同年,Yao 等人采用 1.9 μm 的 Tm:YLF 晶体激光器泵浦 Ho:YAG 晶体,在中心波长 2097.25 nm 处的最大输出功率为 1.04 W,对应于 13.3% 的斜率效率,锁模脉冲重复频率为 82.76 MHz^[53].2016 年,Yao 等人同样采用 Tm³⁺ 光纤激光泵浦 Ho:YAG 晶体,获得了最大平均输出功率为 3.41 W、脉冲持续时间为 294 ps、重复率为 81.92 MHz 的主动锁模脉冲激光输出^[54].同年,Duan 等人报道了基于声光调制器,采用 Tm 光纤激光泵浦 Ho:YAP 晶体主动锁模激光,该激光器实现了最大输出功率为 2.87 W、脉冲宽度为 254.8 ps、中心波长为 2117.8 nm 的脉冲激光输出^[55].随后,他们在 Ho:LuVO₄ 晶体主动锁模激光器中实现了最大输出功率为 3.04 W、脉冲宽度为 363.3 ps、脉冲重复频率为 82.7 MHz 的连续锁模脉冲激光^[56].表 4 列出了 2 μm 波段主动锁模的激光研究的部分进展,可以看出,近年来主动锁模输出的平均功率相对较大,在瓦级以上,脉冲宽度相对较宽,在百 ps 量级.

表 4 2 μm 波段主动锁模的激光研究进展

激光介质	平均功率/mW	脉冲宽度/ps	发表时间	参考文献
Tm:YAG	70	3.5	1992	[3]
Tm, Ho:BaYF	20	97	2003	[33]
Tm:YLF	2600	170	2015	[51]
Ho:LuAG	2700	333.4	2015	[52]
Ho:YAG	1040	102	2015	[53]
Ho:YAG	3410	294	2016	[54]
Ho:YAP	2870	254.8	2016	[55]
Ho:LuVO ₄	3040	363.3	2016	[56]
Ho:YAG 陶瓷	1840	241.5	2016	[48]
Ho:SSO	2720	282.4	2018	[26]

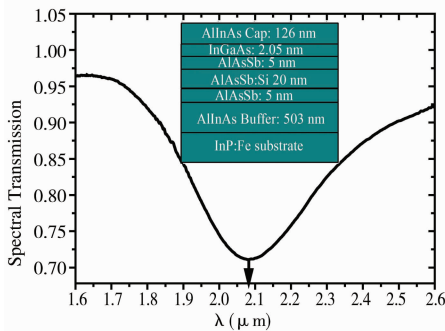
3.2 被动锁模器件

通常主动锁模器件的响应时间较长,其产生的脉冲宽度一般都在皮秒量级,而难以实现飞秒脉冲输出.与主动锁模相比,被动锁模技术利用快响应的非线性光学可饱和吸收效应,具有结构紧凑、效率高、易实现等优点,可产生更窄脉冲.自 2009 年以来,已成功用于产生 Tm³⁺、Ho³⁺ 掺杂 2 μm 波段锁模固体激光的饱和

吸收体包括 ISBTs 量子阱半导体、IBTs-SESAMs、碳纳米管、石墨烯(氧化石墨烯)等,以下将详细介绍上述饱和吸收体在光谱和激光性能等方面的研究结果。

3.2.1 ISBTs 量子阱半导体. 在量子阱结构中,量子阱的导带沿着生长方向会离散成数个子带,当相应波长入射光的电场在沿量子阱生长方向上产生分量时,电子从基态激发到上能级,产生子带间跃迁. 由于各子带之间的相对位置可以通过改变量子阱的结构、阱宽、杂质的掺杂浓度、掺杂位置等参数来控制,而且子带间存在的大量非辐射声子参与各子带能级上电子的弛豫过程,从而使子带间跃迁具有弛豫时间快(典型的弛豫时间为 1 ps 左右)、跃迁波长可调等优点,在量子级联激光器、光电探测器、全光开关等光电器件中具有重要的应用. 然而要实现 2 μm 中红外波段(~ 0.6 eV)子带间跃迁,半导体量子阱和势垒的导带能级间隔需要大于 1eV,实际上只有少数半导体量子阱系统具有这么大的导带能级间隔. 截止目前,人们在 GaAs/AlGaAs、InGaAs/AlAs、InGaAs/AlAsSb 等半导体量子阱系统中发现 2 μm 中红外波段子带间跃迁,利用飞秒激光泵浦探测技术测得子带间跃迁的典型弛豫时间在亚皮秒量级,而且该弛豫时间可以通过改变量子阱的宽度和杂质掺杂浓度进行调整. 为实现半导体量子阱材料中发生较大光子能量的子带间跃迁,量子阱的宽度通常仅为几个原子层大小,如此窄的量子阱在实际制备过程中不可避免地出现阱宽波动,从而使子带间跃迁对应的吸收谱线呈现非均匀加宽的特点,而大的吸收带宽却恰恰适合产生超快激光.

德国康斯坦茨大学杨克建等人自 2008 年开始对 ISBTs 量子阱半导体的光学性质及饱和吸收激光性能进行了研究,在国际上首次利用 ISBTs 量子阱半导体实现了钛宝石激光泵浦 Tm, Ho:YAG 晶体 2 μm 波段被动锁模激光运转. 实验中采用的 In_{0.53}Ga_{0.47}As/Al_{0.53}As_{0.47}Sb 多量子阱结构半导体材料是通过分子束外延技术(MBE)在 InP:Fe 衬底上进行晶格匹配生长的,泵浦探测测得的弛豫时间约 1 ps,其透射光谱与结构如图 4 所示. 由于发生子带间跃迁需要入射光的电场在沿量子阱生长方向上有分量,因此需要将该 ISBTs 半导体以布儒斯特角放置在谐振腔内,如图 5 所示,该激光谐振腔总长 1.45 m,最终获得了脉冲宽度 60 ps、重复频率 106.5 MHz、最大平均功率 160 mW 的 2091 nm 脉冲激光输出^[8].



In_{0.53}Ga_{0.47}As/Al_{0.53}As_{0.47}Sb 多量子阱的透射光,

插图为其生长结构^[8]

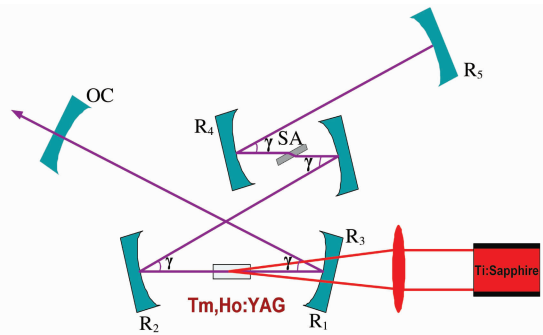


图 5 Tm, Ho:YAG 锁模激光器实验装置^[8]

3.2.2 IBTs-SESAMs. SESAM 被动锁模激光器具有结构简单、稳定可靠、光束质量好等优点,已在皮秒和飞秒锁模激光器中得到了广泛应用,常用 SESAM 的吸收层大都基于带间跃迁半导体量子阱. SESAM 锁模主要基于两个特征弛豫时间,即带内热平衡时间和带间弛豫时间. 带内热平衡时间是激发到导带的电子向子带能级跃迁的时间(几十 fs),在激光形成过程中用来维持和稳定飞秒脉冲;带间弛豫时间是电子从导带向价带的弛豫时间(ps 或 ns 量级),主要用于启动飞秒锁模激光或直接产生皮秒量级的锁模激光脉冲. 目前,用于 2 μm 波段的 IBTs-SESAMs 又具体分为 GaAs 基和 GaSb 基 SESAMs,其中 GaAs-SESAM 已由德国 Batop 公司商业化生产和销售,典型的饱和恢复时间为 10 ps,损伤阈值可达 4 mJ/cm². 2012 年,德国康斯坦茨大学杨克建等人基于 GaAs/InGaAs 量子阱 SESAM 利用 Tm:LYSO 晶体获得了脉宽 33.1 ps、平均功率 130.2 mW 的锁模脉冲激光输出,通过进一步腔内色散补偿,得到的最短脉宽为 19.6 ps、平均功率为 64.5 mW^[27]. 2013 年,杨克建等人利用同样的 GaAs/InGaAs 量子阱 SESAM 实现了 Tm, Ho:YAP 晶体 2064.5 nm 锁模激光的运转,获得的最短脉宽为 40.4 ps,最大输出功率 132 mW^[18]. 2015 年,山东大学冯天利等人将 IBTs-SESAM 作为可饱和吸收体应用于 Tm:LuAG 晶体激光器中,实现了被动锁模的瓦级功率输出,该激光器结构如图 6 所示,获得的锁模脉冲宽度为 38 ps,输出功率为 1.21 W,这是基于 SESAMs 可饱和吸收体在 2 μm

波段首次实现瓦级锁模脉冲的输出^[12]. 2017年,江苏师范大学 Zhou 等人基于 InGaAs 量子阱 SESAM 利用 Tm:CYA 晶体首次实现瓦特级的波长可调谐固体锁模激光器的运转,平均输出功率高达 1.35 W,这是 2 μm 块状晶体锁模的最高输出功率^[57].

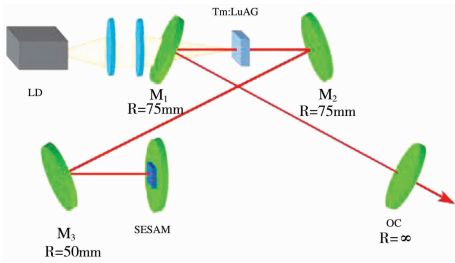


图 6 Tm:LuAG 连续锁模实验装置图^[12]

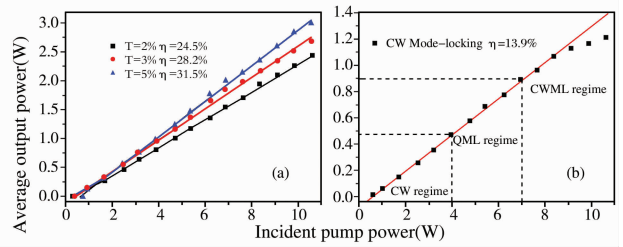


图 7 连续运转和连续锁模的功率特性图^[12]

近年来, GaSb 基 SESAM 已广泛应用于 2 μm 波段固体锁模超快激光中. 2009年,英国圣安德鲁斯大学 Lagatsky 等人基于 GaSb 衬底制备 2 μm 波段 InGaAsSb 量子阱结构 SESAM,然而该量子阱结构大大抑制了载流子俄歇复合效应,致使其饱和和恢复时间大于 100 ps,利用该 SESAM 实现了 Tm, Ho: KYW 晶 3.3 ps 的锁模激光脉冲输出,平均输出功率为 315 mW^[7]. 为了降低 SESAM 饱和和恢复时间,使其适用于产生飞秒脉冲,通常采用离子注入或低温生长的方法. 2010年, Lagatsky 等人通过注入 As⁺ 离子降低了 InGaAsSb 量子阱 SESAM 的饱和和恢复时间,基于同样的 Tm, Ho: KYW 晶体实现了脉宽为 191 fs 的激光脉冲,首次将 2 μm 波段锁模固体激光带入飞秒时代^[39]. 同年,他们通过注入 N⁺ 离子来降低 InGaAsSb 量子阱 SESAM 的饱和和恢复时间,在 Tm, Ho: NaYW 晶体中实现了脉宽为 570 fs 的激光脉冲^[25]. 2012年, Lagatsky 等人采用同样的 InGaAsSb 量子阱 SESAM 在 Tm: Lu₂O₃ 陶瓷中获得了 180 fs 的锁模激光脉冲^[43]. 然而,通过离子注入或者低温生长的方法会降低 SESAM 的反射率,从而增大非饱和吸收损耗,这不利于获得高效超短脉冲激光.

芬兰坦佩雷理工大学的 Guina 等人利用 MBE 生长技术,在不利用离子注入或者低温生长等情况下,制备出了 GaSb/InGaSb 量子阱结构 SESAM,使其快饱和和恢复时间仅为 0.5 ps,慢饱和和恢复时间为 10 ps 左右. 2013年,德国康斯坦茨大学杨克建等人首次利用 GaSb/InGaSb 量子阱结构 SESAM 在 Tm, Ho: YAG 固体激光中实现了 2 μm 波段锁模激光运转,实验装置如图 8 所示,利用 GaSb/InGaSb 量子阱结构 SESAM 获得的最窄脉宽为 21.3 ps,最大平均输出功率为 63 mW^[13]. 2015年,德国马克思·波恩研究所 Gluth 等人利用 GaSb/InGaAsSb 量子阱 SESAM 实现了 Tm: YAG 陶瓷锁模激光运转,脉冲宽度为 3 ps,平均输出功率为 150 mW^[44]. 2016年,马克思·波恩研究所 Wang 等人采用基于 GaSb/InGaSb 量子阱 SESAM 实现了 Tm: CALGO 锁模激光运转,脉冲宽度为 650 fs,平均输出功率为 58 mW^[21]. 2017年,山东大学栾超等人利用 GaSb/InGaSb 量子阱 SESAM 实现了 Tm: LuAG 晶体 2 μm 波段锁模激光运转,获得了最短脉冲宽度 13.6 ps,最大平均功率 98 mW,这是目前利用 Tm: LuAG 晶体获得的最短锁模脉宽^[11]. 虽然基于 GaSb 衬底的 SESAM 在 2 μm 波段锁模固体激光方面已经取得了一些研究进展,但其本身的低损伤阈值制约着输出功率的提升,仍需要进一步优化其性能.

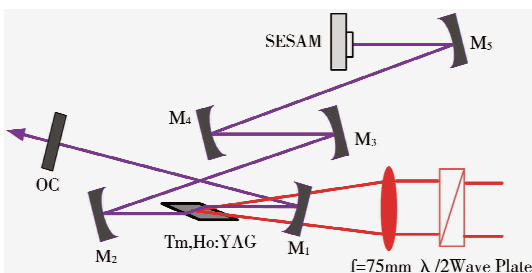


图 8 Tm, Ho: YAG 锁模激光器实验装置^[13]

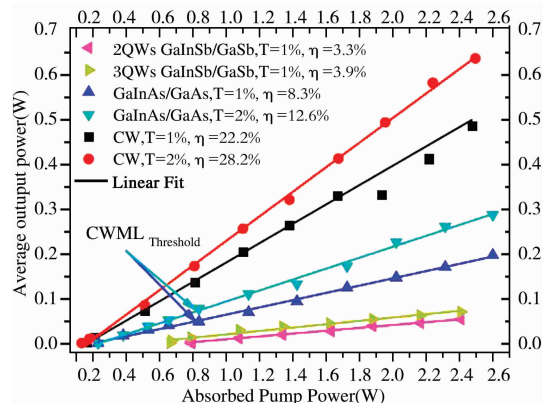


图 9 Tm, Ho: YAG 锁模激光器实验装置^[13]

表 5 是 2 μm 波段 Tm³⁺、Ho³⁺ 掺杂的 IBTs-SESAMs 锁模固体激光器的研究进展,与主动锁模相比,虽

然输出平均功率相对较低,一般在百 mW 量级,但是脉冲宽度已经可以达到亚百 fs 量级,所以 SESAMs 已越来越广泛地应用在 2 μm 波段锁模固体激光器中.但其本身仍然存在一些固有缺点.例如,SESAMs 制备过程中容易受半导体晶格常数的制约,工作带宽通常只有几十个纳米,导致工作波长不能随意改变,更无法实现宽带光谱范围内的光学调制.另外,SESAMs 需利用复杂的 MBE 制备工艺,成本高,目前即使已商用化的 SESAM 仍需要五、六千元一片,因此人们也一直在不断寻找低成本、高性能新型 2 μm 波段可饱和吸收体.

表 5 基于 IBTs-SESAMs 的 2 μm 波段锁模固体激光研究进展

锁模元件	激光介质	平均功率/mW	脉冲宽度/fs	中心波长/nm	发表时间	参考文献
InGaAsSb-SESAM	Tm, Ho; KYW	315	3300	2057	2009	[7]
InGaAsSb-SESAM	Tm; GPNG	84	410	1997	2010	[10]
InGaAsSb-SESAM	Tm, Ho; TZN	38	630	2012	2010	[10]
InGaAsSb-SESAM	Tm; Sc ₂ O ₃	210	218	2107	2012	[25]
InGaAsSb-SESAM	Ho; YLF	580	1100	2064	2011	[31]
InGaAsSb-SESAM	Tm; Ho; KYW	130	570	2055	2010	[35]
InGaAsSb-SESAM	Tm, Ho; KLuW	155	7200	2060	2015	[38]
InGaAsSb-SESAM	Tm, Ho; NYW	82	191	2058	2010	[39]
InGaAsSb-SESAM	Tm; Lu ₂ O ₃ 陶瓷	400	180	2076	2012	[43]
InGaAsSb-SESAM	Tm; LuScO 陶瓷	175	63	2057	2018	[50]
InGaAs-SESAM	Tm; LuAG	1210	38000	2022.9	2015	[12]
InGaAs-SESAM	Tm, Ho; YAP	132	40400	2064.5	2013	[18]
InGaAs-SESAM	Tm; LYSO	64.5	19600	1944.3	2012	[27]
InGaAs-SESAM	Tm; YLF	95	31000	1909	2018	[30]
InGaSb-SESAM	Tm; YAG 陶瓷	125	6300	2012	2013	[46]
GaSb-SESAM	Tm, Ho; CALYO	27	87	2024.6	2018	[22]
GaSb-SESAM	Tm; YAG 陶瓷	150	30000	2012	2015	[44]
GaSb-SESAM	Tm; LuAG 陶瓷	232	2700	2022	2017	[47]
GaSb-SESAM	Ho; YAG 陶瓷	230	2100	2064	2016	[49]

3.2.3 单壁碳纳米管(SWCNTs)锁模.碳纳米管(Carbon Nanotubes, CNTs)是继 SESAMs 后最早应用的新型可饱和吸收锁模材料,按照层数的不同可分为 SWCNTs 和多壁碳纳米管(Multi-walled carbon nanotube, MWCNTs).CNTs 的制备方法有多种,其中电弧放电法^[58]和化学气相沉淀法(Chemical vapor deposition, CVD)^[59]是当前最常用的两种制备方法.电弧放电法是传统的制备大量 SWCNTs 的方法之一,具有方法简单、成本低的优点,但产量比较低.由于 CVD 具有成本低、反应过程可控性强等特点,这种方法已成为制备 SWCNTs 的主要方法.随着制备方法的不断改进,高质量的 CNTs 为锁模激光的发展了有利条件.2012 年,山东师范大学刘杰课题组采用双壁碳纳米管(Double-wall carbon nanotube, DWCNTs)作为可饱和吸收体首次在 2 μm 固体激光器中实现锁模^[60].SWCNTs 与 MWCNTs 相比,它的直径小、缺陷少且均匀一致性更高,工作波段宽(300-2300 nm),可以作为一种恢复时间短(<800 fs)、制备容易、饱和光强小的可饱和吸收体.

2003 年,日本 S. Y. Set 等人首次以 SWCNT 为饱和吸收锁模元件,在掺铒光纤激光器中成功实现了皮秒量级的锁模激光运转^[61].直到 2009 年,德国马克思-波恩研究所 Cho 等人首次实现了钛宝石激光泵浦 Tm:KLu(WO₄)₂ 晶体 SWCNTs 被动锁模 2 μm 激光运转^[6].此后,SWCNTs 作为可饱和吸收锁模元件广泛应用于 2 μm 波段固体锁模激光中.2014 年,德国马克思-波恩研究所 Aleksandrov 等人采用电弧放电法制备了 SWCNTs,测得其在 2.06 μm 处的调制深度为 1.4 %,饱和恢复时间大约为 1 ps,饱和通量为 10 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$,并利用该 SWCNTs 成功实现了 Tm, Ho:KLuW 锁模激光运转,获得的脉冲宽度为 2.8 ps,重复频率为 91 MHz,平均功率为 97 mW^[37].

此外,基于 SWCNTs 为饱和吸收体在实现亚百飞秒锁模脉冲激光输出方面也取得了很多成果.2018 年,德国马克思-波恩研究所 Pan 等人利用 SWCNTs 并进一步采用啁啾镜进行色散补偿,在 Tm:CNNGG 晶体激光器中实现了短至 84 fs 的锁模脉冲输出^[62].随后,马克思-波恩研究所 Wang 等人利用 SWCNTs 实现了 Tm:CLNGG 晶体 2017 nm 锁模激光的运转,获得的最短脉宽为 78 fs,平均功率 54 mW^[17].同年, Pan 等人基于 SWCNTs 饱和吸收体利用无序石榴石晶体 Tm, Ho:CNNGG 获得了脉冲宽度 76 fs、平均功率 67

mW 的锁模脉冲激光输出,这是到目前为止从 Ho^{3+} 掺杂或 Tm^{3+} , Ho^{3+} 共掺的激光器获得的最短脉冲持续时间^[63].表 6 是基于 SWCNTs 锁模 Tm^{3+} 、 Ho^{3+} 掺杂晶体 $2\ \mu\text{m}$ 波段固体激光的研究进展情况,亚百 fs 量级的结果已经在 SWCNTs 锁模器件中很常见,但其输出功率通常较低,在几十 mW 左右.

表 6 基于 SWCNTs 的 $2\ \mu\text{m}$ 波段锁模固体激光研究进展

激光晶体	平均功率/mW	脉冲宽度/fs	中心波长/nm	发表时间	参考文献
Tm:KLuW	240	9700	1944	2009	[6]
Tm:CLNGG	54	78	2017	2018	[17]
Tm:Lu ₂ O ₃	36	175	2070	2012	[23]
Tm:YLF	55	19000	1888	2011	[28]
Tm:KLuW	26	141	2037	2012	[36]
Tm, Ho:KLuW	97	2800	2060	2014	[37]
Tm:CNNGG	22	84	2018	2018	[62]
Tm, Ho:CNGG	67	76	2081	2018	[63]

3.2.4 石墨烯锁模.石墨烯是二维纳米结构碳材料,具有热导率和电子迁移高、比表面积大、宽波段响应等特性,在电子学和光学等领域都有广泛的应用.石墨烯虽然具有很多优良物理化学特性,但在实际的制备过程中存在层数堆叠、尺寸难以控制,无法实现大规模生产的弊端.机械剥离法是最早实现石墨烯成功制备的方法,制备出的石墨烯尺寸很小,产量低,但它一直是制备高质量单层石墨烯的最佳途径^[64].另外,CVD 法可以实现石墨烯的大批量高质量生产,能实现石墨烯的层数可控^[65].因此,这种方法制备的石墨烯作为可饱和吸收体在不同的激光器上都成功实现了稳定的锁模输出.石墨烯稳定锁模的实现依赖于两个超快的特征弛豫时间,即带内载流子热平衡过程和带间载流子复合过程.带内载流子热平衡过程的时间很短(几十到百 fs),在锁模过程中能够产生飞秒脉冲有效稳定锁模;带间载流子复合过程比较长(几十到百 ps),可以用于启动锁模^[66].与传统的半导体材料不同,石墨烯的导带和价带相交在狄拉克点,具有零带隙结构,这使得其在所有波段对光都有吸收作用,能够适用于超宽带光谱范围的应用.石墨烯具有的可饱和吸收特性可以作为锁模器件来产生超短锁模脉冲,加上制备过程简单,饱和恢复时间超快的优点,相比于商业化的 SESAMs 具有很大的优势.

2009 年,新加坡国立大学的 Bao 等人第一次利用石墨烯在掺铒光纤激光器中实现锁模,脉冲宽度 765 fs^[67].此后,石墨烯锁模技术受到人们的关注,尤其是 $2\ \mu\text{m}$ 波段石墨烯锁模固体激光器的研究得到了快速发展.2012 年,上海交通大学的马杰等人基于 CVD 方法生长的石墨烯,并结合 CaF_2 棱镜对进行腔内色散补偿,激光二极管泵浦 Tm:CLNGG 晶体实现飞秒锁模脉冲的输出,获得的脉冲宽度为 729 fs,重复频率为 98.7 MHz,平均输出功率为 60.2 mW^[16].2016 年,山东师范大学刘杰课题组利用化学气相沉积技术在铜箔上生长出高质量的单层石墨烯作为可饱和吸收体,激光二极管泵浦 Tm:YAP 晶体实现了被动锁模脉冲输出,得到的最大输出功率为 256 mW,重复频率为 62.38 MHz 的脉冲序列^[68].2017 年,马克思-波恩研究所 Wang 等人采用石墨烯作为可饱和吸收体以及啁啾镜作为色散补偿元件,钛宝石激光器泵浦 Tm:MgW 晶体实现了稳定的自启动锁模运转.锁模获得的输出脉冲的中心波长位于 2017 nm,重复率为 76 MHz,脉宽短至 86 fs,这是基于石墨烯可饱和吸收体所获得的最短脉宽^[40].表 7 是基于石墨烯的 $2\ \mu\text{m}$ 波段锁模固体激光器的研究进展,其输出功率同样可以达到百 mW 量级,可以看出,石墨烯是有潜力替代 SESAMs 的新型可饱和吸收体材料.

表 7 基于石墨烯 $2\ \mu\text{m}$ 波段被动锁模的激光研究进展

激光介质	平均功率/mW	脉冲宽度/fs	中心波长/nm	发表时间	参考文献
Tm:CLNGG	60.2	729	2018	2012	[16]
Tm:Lu ₂ O ₃	270	410	2067	2013	[24]
Tm:MgW	39	86	2017	2017	[40]
Tm:YAG 陶瓷	158	2800	2016	2015	[45]
Tm:YAP	256	35000	1988.5	2016	[68]
Tm:YAP	268	<10000	2023	2012	[69]

4 结论

本文围绕固体激光介质和锁模器件等方面对 $2\ \mu\text{m}$ 锁模固体激光近十年来的进展情况进行了回顾.到

目前为止,人们已经开发出了各种 Tm^{3+} 和 Ho^{3+} 离子掺杂的锁模固体激光介质,如玻璃、陶瓷以及石榴石、铝酸盐、硅酸盐、钨酸盐、氟化物、倍半氧化物等晶体,每种材料在产生超快激光方面各有所长.其中,在大功率超快激光方面表现突出的是 $\text{Tm}:\text{YAP}$ 、 $\text{Tm}:\text{LuAG}$ 和 $\text{Tm}:\text{CYA}$ 晶体,这些晶体作为增益介质在被动锁模激光器中实现了瓦级功率输出.另外,有许多激光材料在输出短脉冲方面表现突出,如无序结构晶体 $\text{Tm}:\text{CLNGG}$ 、 $\text{Tm}:\text{CNGG}$ 、 $\text{Tm},\text{Ho}:\text{CNGG}$ 、 $\text{Tm},\text{Ho}:\text{CALYO}$ 以及钨酸盐晶体 $\text{Tm}:\text{MgW}$ 和激光陶瓷 $\text{Tm}:\text{LuScO}_3$ 激光器中已经实现亚 100 fs 激光脉冲的输出,通过进一步提高晶体质量,优化激光器设计有望实现亚 50 fs 锁模脉冲激光输出.

在饱和吸收锁模器件方面,商业化的 SESAMs 是实现 2 μm 波段稳定锁模激光的常用手段,它的输出功率相对较高,脉冲宽度可达到 fs 量级.不过 SESAMs 制备工艺复杂,成本高,工作带宽较窄等,限制了其在中红外超快激光中的应用.近年来,单壁碳纳米管、石墨烯的出现,为人们打开了低维纳米光学材料的大门,这一类材料具有制备简单、工作带宽大、响应快、带隙可调等优点,为中红外超快激光器件提供了更多选项.除石墨烯外,最近过渡金属硫化物如 MoS_2 ^[70]、 WS_2 ^[71] 以及拓扑绝缘体如 Sb_2Te_3 ^[72] 等新型低维结构纳米材料已在 2 μm 光纤激光器中实现了锁模激光运转,如进一步提高大尺寸制备质量,降低非饱和吸收损耗,增加光学损伤阈值,未来在 2 μm 波段锁模固体激光中具有巨大的应用潜力.

参 考 文 献

- [1] Singh U N, Walsh B M, Yu J, et al. Twenty years of $\text{Tm}:\text{Ho}:\text{YLF}$ and LuLiF_4 laser development for global wind and carbon dioxide active remote sensing[J]. *Optical Materials Express*, 2015, 5(4): 827-837.
- [2] Petrov V. Frequency down-conversion of solid-state laser sources to the mid-infrared spectral range using nonoxide nonlinear crystals[J]. *Progress in Quantum Electronics*, 2015, 42: 1-106.
- [3] Pinto J F, Leon Esterowitz L. Continuous-wave mode-locked 2- μm $\text{Tm}:\text{YAG}$ laser[J]. *Optics Letters*, 1992, 17 (10): 731-732.
- [4] Zhang J, MaK K F, Gröbmeyer S, et al. Generation of 220 fs, 20 W pulses at 2 μm from Kerr-lens mode-locked $\text{Ho}:\text{YAG}$ thin-disk oscillator[J]. *Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2017, 6: 308-315.
- [5] Tokurakawa M, Fujita E, et al. Kerr-lens mode-locked $\text{Tm}^{3+}:\text{Sc}_2\text{O}_3$ single-crystal laser in-band pumped by an $\text{Er}:\text{Yb}$ fiber MOPA at 1611 nm[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(16): 3185-3188.
- [6] Cho W B, Schmidt A, Yim J H, et al. Passive mode-locking of a Tm -doped bulk laser near 2 μm using a carbon nanotube saturable absorber[J]. *Optics Express*, 2009, 17(13): 11007-11012.
- [7] Lagatsky A A, Fusari F, Calvez S, et al. Passive mode locking of a $\text{Tm},\text{Ho}:\text{KY}(\text{WO}_4)_2$ laser around 2 μm [J]. *Optics Letters*, 2009, 34 (17): 2587-2589.
- [8] Yang K J, Bromberger H, Ruf H, et al. Passively mode-locked $\text{Tm},\text{Ho}:\text{YAG}$ laser at 2 μm based on saturable absorption of intersubband transitions in quantum wells[J]. *Optics Express*, 2010, 18(7): 6537-6544.
- [9] Sholle K, Lamrini S, Koopmann P, et al. 2 μm laser sources and their possible applications[C]. // *Frontiers in Guided Wave Optics and Optoelectronics*, 2010.
- [10] Fusari F, Lagatsky A A, Jose G, et al. Femtosecond mode-locked Tm^{3+} and $\text{Tm}^{3+}-\text{Ho}^{3+}$ doped 2 μm glass lasers[J]. *Optics Express*, 2010, 18(21): 22090-22098.
- [11] Luan C, Yang K, Zhao J, et al. Diode-pumped mode-locked $\text{Tm}:\text{LuAG}$ laser at 2 μm based on GaSb -SESAM[J]. *Optics Letter*, 2017, 42 (4): 839-842.
- [12] Feng T, Yang K, Zhao J, et al. 1. 21 W passively mode-locked $\text{Tm}:\text{LuAG}$ laser[J]. *Optics Express*, 2015, 23(9): 11819-11824.
- [13] Yang K, Heinecke D, Paajaste J, et al. Mode-locking of 2 μm $\text{Tm},\text{Ho}:\text{YAG}$ laser with GaInAs and GaSb -based SESAMs[J]. *Optics Express*, 2013, 21(4): 4311-4318.
- [14] Beil K, Thomson S, Tellkamp F, et al. Thermal and laser properties of $\text{Yb}:\text{LuAG}$ for kW thin disk lasers[J]. *Optics Express*, 2010, 18: 20712-20722.
- [15] Ma J, Xie G Q, Gao W L, et al. Diode-pumped mode-locked femtosecond $\text{Tm}:\text{CLNGG}$ disordered crystal laser[J]. *Optics Letters*, 2012, 37 (8): 1376-1378.
- [16] Xie G Q, Ma J, Gao W L, et al. Graphene mode-locked femtosecond laser at 2 μm wavelength[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(11): 2085-2087.
- [17] Wang Y, Zhao Y, Pan Z, et al. 78 fs SWCNT-SA mode-locked $\text{Tm}:\text{CLNGG}$ disordered garnet crystal laser at 2017 nm[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(17): 4268-4271.
- [18] Yang K J, Heinecke D C, Kölbl C, et al. Mode-locked $\text{Tm},\text{Ho}:\text{YAP}$ laser around 2. 1 μm [J]. *Optics Express*, 2013, 21(2): 1574-1580.
- [19] Hou J, Zhang B, Su X, et al. High efficient mode-locked $\text{Tm}:\text{YAP}$ laser emitting at 1938 nm by SESAM[J]. *Optics Communications*, 2015, 347: 88-91.
- [20] Sullivan A C, Wagner G J, Gwin D, et al. High power Q-switched $\text{Tm}:\text{YAlO}_3$ lasers[C]. // *Advanced Solid-State Photonics*, 2004.
- [21] Wang Y, Xie G, Xu X, et al. SESAM mode-locked $\text{Tm}:\text{CALGO}$ laser at 2 μm [J]. *Optical Materials Express*, 2016, 6(1): 131-136.

- [22] Zhao Y, Wang Y, Zhang X, et al. 87 fs mode-locked Tm, Ho:CaYAlO₄ laser at ~2043 nm[J]. Optics Letters, 2018, 43(4):915-918.
- [23] Schmidt A, Koopmann P, Huber G, et al. 175 fs Tm:Lu₂O₃ laser at 2.07 μm mode-locked using single-walled carbon nanotubes[J]. Optics Express, 2012, 20(5):5313-5318.
- [24] Lagatsky A A, Sun Z, Kulmala T S, et al. 2 μm solid-state laser mode-locked by single-layer graphene[J]. Applied Physics Letters, 2013, 102:013113.
- [25] Lagatsky A A, Koopmann P, Fuhrberg P, et al. Passively mode locked femtosecond Tm:Sc₂O₃ laser at 2.1 μm[J]. Optics Letters, 2012, 37(3):437-439.
- [26] Xiao Y, Mu Y, Yang L, et al. A ps level actively mode-locked Ho:Sc₂SiO₅ laser at 2112.1 nm resonantly-pumped by Tm fiber laser[J]. Laser Physics, 2018, 28:015801.
- [27] Yang K J, Bromberger H, Heinecke D, et al. Efficient continuous wave and passively mode locked Tm-doped crystalline silicate laser[J]. Optics Express, 2012, 21(17):18630-18635.
- [28] Schmidt A, Parisi D, Veronesi S, et al. Passive Mode-Locking of a Tm:YLF Laser[C]. // Optical Society of America, 2011.
- [29] Souillard R, Tyazhev A, Doualan J, et al. 2.3 μm Tm³⁺:YLF mode-locked laser[J]. Optics Letters, 2017, 42(18):3534-3536.
- [30] Tyazhev A, Souillard R, Godin T, et al. Passively mode-locked diode-pumped Tm³⁺:YLF laser emitting at 1.91 μm using a GaAs-based SESAM[J]. Laser Physics Letters, 2018, 15:045807.
- [31] Coluccelli N, Lagatsky A, Lieto A D, et al. Passive mode locking of an in-band-pumped Ho:YLiF₄ laser at 2.06 μm[J]. Optics Letters, 2011, 36:3209-3211.
- [32] Coluccelli N, Galzerano G, Gatti D, et al. Passive mode-locking of a diode-pumped Tm:GdLiF₄ laser[J]. Applied Physics B, 2010, 101:75-78.
- [33] Galzerano G, Marano M, Longhi S, et al. Sub-100-ps amplitude-modulation mode-locked Tm-Ho:BaY₂F₈ laser at 2.06 μm[J]. Optics Letters, 2003, 28(21):2085-2087.
- [34] Ling W J, Xia T, Dong Z, et al. 1.91 μm Passively continuous-wave mode-locked Tm:LiLuF₄ laser[J]. Optics and Laser Technology, 2018, 108:364-367.
- [35] Lagatsky A A, Fusari F, Alvez S, et al. Femtosecond pulse operation of a Tm, Ho-codoped crystalline laser near 2 μm[J]. Optics Letters, 2010, 35(2):172-174.
- [36] Schmidt A, Choi S Y, Yeom D, et al. Femtosecond pulses near 2 μm from a Tm:KLuW laser mode-locked by a single-walled carbon nanotube saturable absorber[J]. Applied Physics Express, 2012, 092704:1-4.
- [37] Aleksandrov V, Gluth A, Petrov V, et al. Tm, Ho:KLu(WO₄)₂ laser mode-locked near 2 μm by single-walled carbon nanotubes[J]. Optics Express, 2014, 22(22):26872-26877.
- [38] Aleksandrov V, Gluth A, Petrov V, et al. Mode-locked Tm, Ho:KLu(WO₄)₂ laser at 2060 nm using InGaSb-based SESAMs[J]. Optics Express, 2015, 23(4):4614-4619.
- [39] Lagatsky A A, Han X, Serrano M D, et al. Femtosecond (191 fs) NaY(WO₄)₂ Tm, Ho-codoped laser at 2060 nm[J]. Optics Letters, 2010, 35(18):3027-3029.
- [40] Wang Y, Chen W, 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.
- [41] Yao B, Wang W, Yu K, et al. Passively mode-locked Tm, Ho:YVO₄ laser based on a semiconductor saturable absorber mirror[J]. Chinese Optics Letters, 2012, 10(7):071402.
- [42] Hatch S E, Parsons W F, Weagley R J. Hot-pressed polycrystalline Dy²⁺:CaF₂ laser[J]. Applied Physics Letters, 1964, 5(8):153-154.
- [43] Lagatsky A A, Antipov O L, Sibbe Wt. Broadly tunable femtosecond Tm:Lu₂O₃ ceramic laser operating around 2070 nm[J]. Optics Express, 2012, 20:19349-19354.
- [44] Gluth A, Wang Y, Petrov V, et al. GaSb-based SESAM mode-locked Tm:YAG ceramic laser at 2 μm[J]. Optics Express, 2015, 23(2):1361-1369.
- [45] Ma J, Xie G Q, Zhang J, et al. Passively mode-locked Tm:YAG ceramic laser based on graphene[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2015, 21(1):160-165.
- [46] Gluth A, Mateos X, Paajaste J, et al. Passively mode-locked Tm:YAG ceramic laser at 2 μm[J]. Advanced Solid-State Lasers Congress, 2013, 2:801-807.
- [47] Wang Y, Lan R, Mateos X, et al. Thulium doped LuAG ceramics for passively mode locked lasers[J]. Optics Express, 2017, 25(6):7084-7091.
- [48] Duan X, Yuan J, Cui Z, et al. Resonantly pumped actively mode-locked Ho:YAG ceramic laser at 2122.1 nm[J]. Applied Optics, 2016, 55(8):1953-1956.
- [49] Wang Y, Lan R, Mateos X, et al. Broadly tunable mode-locked Ho:YAG ceramic laser around 2.1 μm[J]. Optics Express, 2016, 24(16):18003-18012.
- [50] Wang Y, Jing W, Loiko P, et al. Sub-10 optical-cycle passively mode-locked Tm:(Lu_{2/3}Sc_{1/3})₂O₃ ceramic laser at 2 μm[J]. Optics Express, 2018, 26(8):10299-10304.
- [51] Mužik J, M Jelínek Jr, Vyhliďal D, et al. 2.6 W diode-pumped actively mode-locked Tm:YLF laser[J]. Laser Phys Lett, 2015, 12:035802.
- [52] Cui Z, Duan X M, Yao B Q, et al. Actively mode-locked Ho:LuAG laser at 2.1 μm[J]. Applied Physics B, 2015, 121:421-424.
- [53] Yao B Q, Cui Z, Wang J, et al. An actively mode-locked Ho:YAG solid laser pumped by a Tm:YLF laser[J]. Laser Phys Lett, 2015, 12:

025002.

- [54] Yao B Q, Li H, Li X L, et al. An actively mode-locked Ho:YAG solid-laser pumped by a Tm-doped fiber laser[J]. Chinese Physics Letter, 2016, 33:044205.
- [55] Duan X, Zhang P, Cui Z, et al. Actively mode-locked Ho:LuVO₄ laser at 2073.8 nm[J]. Opt Eng, 2016, 55 (12):126104.
- [56] Duan X, Lin W, Cui Z, et al. Resonantly pumped continuous wave mode locked Ho:YAP laser[J]. Appl Phys B, 2016, 122:88.
- [57] Zhou W, Xu X, Xu R, et al. Watt-level broadly wavelength tunable mode-locked solid-state laser in the 2 μm water absorption region[J]. Photonics Research, 2017, 5(6):583-587.
- [58] Iijima S. Helical microtubules of graphitic carbon[J]. Nature, 1991, 354(6348):56-58.
- [59] Bartsch K, Arnold B, Kaltofen R, et al. Effects of catalyst pre-treatment on the growth of single-walled carbon nanotubes by microwave CVD[J]. Carbon, 2007, 45(3):543-552.
- [60] Qu Z, Wang Y, Liu J, et al. Passively mode-locked 2- μm Tm:YAP laser with a double-wall carbon nanotube absorber[J]. Chin Phys B, 2012, 21(6):064211.
- [61] Set S Y, Yagucgih H, Tanakay, et al. Laser mode locking using a saturable absorber incorporating carbon nano-tubes[J]. Journal of Light-wave Technology, 2004, 22(1):51-54.
- [62] Pan Z, Wang Y, Zhao Y, et al. Generation of 84-fs pulses from a mode-locked Tm:CNNGG disordered garnet crystal laser[J]. Photonics Research, 2018, 6(8):800-804.
- [63] Pan Z, Wang Y, Zhao Y, et al. Sub-80 fs mode-locked Tm, Ho-codoped disordered garnet crystal oscillator operating at 2081 nm[J]. Optics Letters, 2018, 43(20):5154-5157.
- [64] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, et al. Electric field effect in atomically thin carbon films[J]. Science, 2004, 306:666-669.
- [65] Reina A, Jia X, Ho J, et al. Large area, few-layer graphene films on arbitrary substrates by chemical vapor deposition[J]. Nano Letters, 2008, 9:30-35.
- [66] 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, 8:4248-4251.
- [67] Bao Q, Zhang H, Wang Y, et al. Atomic-layer graphene as a saturable absorber for ultrafast pulsed lasers[J]. Advanced Functional Materials, 2009, 19:3077-3083.
- [68] Wan H, Cai W, Wang F, et al. High-quality monolayer graphene for bulk laser mode-locking near 2 μm [J]. Optical and Quantum Electronics, 2016, 48(11):1-8.
- [69] Liu J, Wang Y G, Qu Z S, et al. Graphene oxide absorber for 2 μm passive mode-locking Tm:YAlO₃ laser[J]. Laser Physics Letters, 2012, 9(1):15-19.
- [70] Cao L, Li X, Zhang R, et al. Tm-doped fiber laser mode-locking with MoS₂-polyvinyl alcohol saturable absorber[J]. Optical Fiber Technology, 2018, 41:187-192.
- [71] Li X, Qian J and Ai F. 600 fs mode-locked solid-state laser based on few-layer WS₂ saturable absorber[J]. Laser Phys, 2018, 28:045003.
- [72] Wang J, Yin J, He T, et al. Sb₂Te₃ mode-locked ultrafast fiber laser at 1.93 μm [J]. Chin Phys B, 2018, 27(8):084214.

Progress in the Mode-locked Solid-state Lasers Around the 2 μm Spectral Range

YANG Ya-ling¹ YANG Ke-jian^{1,2} ZHAO Sheng-zhi¹

GUO Lei¹ ZHANG Bai-tao² WANG Rui-hua² HE Jing-liang²

(1. School of Information Science and Engineering, Shandong University, Qiangdao 266237, China;

2. State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Jinan 250100, China)

Abstract The mid-infrared 2 μm mode-locked ultrafast laser has a wide range of applications in industrial, military, environmental, medical and scientific research fields. In recent years, with the continuous development of solid-state laser materials and mode-locked devices in the mid-infrared region, using mode-locking technology to directly generate solid ultrashort pulse lasers in the 2 μm band has become one of the effective technical approaches. This paper reviews the research progress in the mode-locked solid-state lasers around the 2 μm spectral range, which includes a comprehensive review of laser materials, mode-locked devices, pulse width compression, and includes an outlook for the development of solid ultrafast lasers near the 2 μm in the future.

Key words 2 μm ultrafast laser; mode-locked; solid-state laser; diode pump