

基于 MoS_2 可饱和吸收的 $\text{Nd}:\text{ScYSiO}_5$ 晶体调 Q 激光特性研究

王强国 崔 娜 姚勇平 刘善德

(山东科技大学 电子信息工程学院, 山东 青岛 266590)

摘 要 通过液相剥离法成功制备多层 MoS_2 溶液, 将上层清液旋涂于 YAG 晶体表面, 并进行烘干, 制成实验所用的可饱和吸收镜. 多层 MoS_2 可饱和吸收镜的微观形貌及层数由 AFM 进行表征, 结果显示其表面较为平整, 层数约为 12 层. 实验中, 实现了基于多层 MoS_2 可饱和吸收的 $\text{Nd}:\text{ScYSiO}_5$ 晶体 1074.7 nm 和 1078.2 nm 双波长调 Q 稳定运转. 在 3.3 W 的吸收泵浦功率下, 获得了 392 mW 的调 Q 激光输出, 斜效率为 13.8%. 获得的最短激光脉冲宽度, 最大的脉冲重复频率及单脉冲能量分别为 460.7 ns, 313.5 kHz 和 1.25 μJ . 实验结果表明, 在 1 μm 波段, 多层 MoS_2 是一种优异光电材料, 具有良好的可饱和吸收特性.

关键词 MoS_2 饱和吸收体; $\text{Nd}:\text{ScYSiO}_5$ 晶体; 被动调 Q; 双波长激光

中图分类号 TN248

文献标识码 A

0 引言

超快激光具有极短的脉冲持续时间、极宽的光谱、极高的峰值功率等特点, 因而超快激光与物质的相互作用是光学、化学、生命及材料学科的前沿研究热点之一. 以可饱和吸收体(Saturable Absorber, SA) 作为调制元件的被动调 Q 和被动锁模技术以其结构紧凑、性能稳定等优点, 成为当下获取超快脉冲激光的重要手段之一. 因而, SA 的可饱和吸收性能好坏将直接决定超快激光器件的实用水平, 成为超快激光技术里面的关键因素. 半导体可饱和吸收镜(Semiconductor Saturable Absorber Mirror, SESAM) 是一种商业化的调 Q 和锁模器件, 具有较高的激光损伤阈值和优异的可饱和吸收特性, 但 SESAM 的制备需要昂贵的外延设备, 技术复杂, 且工作波段较窄(仅有几十个纳米^[1]); 目前 SESAM 主要用于 1-2 μm 波段, 超过 2 μm 波段的材料设计会使材料本身带来较大的晶格失配和量子缺陷, 造成损伤阈值迅速变低, 散射损耗加大. 碳纳米管(Carbon Nanotube, CNT) 是继 SESAM 之后出现的纳米材料级 SA^[2], 价格优势巨大, 但是 CNT 的工作波段主要由其管径来决定, 且 CNT 之间相互的范德瓦尔斯力造成相当大的散射损耗^[3]. 同属于碳材料, 石墨烯自从石墨中成功机械剥离后, 引起了广大科研工作者的持续关注. 石墨烯因其独特的二维平面结构, 具有超高的电子迁移率, 超快的电子、空穴驰豫时间, 在光电子领域具有重要的应用前景. 以石墨烯作为 SA, 在固体、光纤激光器中都实现了调 Q 及锁模激光输出^[4-6]. 石墨烯材料的成功应用强烈地激发了人们对类石墨烯二维材料的研究兴趣.

近几年, 拓扑绝缘体、黑磷、过渡金属硫化物等二维材料不断出现在我们的视野中, 由于量子局限效应和表面态的存在, 使这些二维材料展现出了与各自体块材料迥异的性质. 拓扑绝缘体是一种具有特殊能带结构的材料, 其内部呈绝缘态, 表面存在狄拉克型的电子态, 呈现金属性, 也已经被证明是一类具有宽带可饱和吸收特性的量子材料. Bi_2Se_3 和 Bi_2Te_3 是其中的典型代表, 都实现了 1 μm 和 1.3 μm 波段的调 Q 激光输出, 脉冲宽度在百纳秒量级^[7-9]. 但是复杂的制备流程在一定程度上限制了拓扑绝缘体在光电器件方面的广泛应

收稿日期: 2018-12-01

基金项目: 国家自然科学基金项目(61505098); 山东省重点研发计划(2018GGX102005); 青岛市应用基础研究专项(18-2-2-11-jch) 等资助

通讯作者: 刘善德, 男, 汉族, 博士, 讲师, 研究方向: 激光技术与器件, E-mail: pepsi_liu@163.com.

用. 黑磷因其宽带饱和吸收和可调节带隙特点被大家熟知,随着层数的增加,其带隙从 2 eV 减小到 0.3 eV,对应的吸收波长范围为 0.6-4.1 μm ^[10],可以弥补石墨烯零带隙结构在集成电路方面的应用缺陷. 另外,黑磷的饱和驰豫时间超快,只有 24 fs. 2015 年,马杰等人第一次将黑磷作为 SA 应用于全固态激光器中,获得了中心波长为 1046 nm、脉宽为 620 ns 的调 Q 脉冲输出^[11]. 随后,黑磷 SA 在 1-3 μm 波段的可饱和吸收特性也被广泛挖掘^[12-16]. 遗憾的是,黑磷在空气中极易被氧化,化学性质的不稳定是目前急需解决的问题之一. 与黑磷相比,二维过渡金属硫化物(TMDs) 在环境中具有较好的稳定性. TMDs 为三明治结构,过渡金属元素组成的原子层夹在两个硫族原子层中间. 其中,TMDs 类材料中最典型的是二硫化钼(MoS₂),其能带结构具有强烈的层数依赖性,当层数减少时,MoS₂ 会从间接带隙变为直接带隙,光致发光显著增强,同时带隙大小从 1.29 eV 变成 1.8 eV,单层 MoS₂ 的电子迁移率为 100 cm²/Vs,电子-空穴的饱和恢复时间为 1.8-2.1 ps. MoS₂ 层间的范德瓦尔斯力比较小,因此,可以采用机械剥离、液相剥离的方法直接从体块 MoS₂ 晶体中制备单层或多层 MoS₂. 到目前为止,基于单层或多层 MoS₂ 饱和吸收体实现了多波段的调 Q 激光运转^[17-19],单从结果来看,激光脉冲宽度大部分集中在 μs 量级,激光输出功率也比较低.

本文采用液相剥离法成功制备了多层 MoS₂ 可饱和吸收镜. 用原子力显微镜(Atomic Force Microscope, AFM) 对制备的 MoS₂ 可饱和吸收镜进行微观形貌表征,并实现基于 MoS₂ 可饱和吸收的 Nd:ScYSiO₅ 晶体 1074.7 nm 和 1078.2 nm 双波长调 Q 激光脉冲输出. 在泵浦功率为 3.3 W 时,获得了 392 mW 的最大输出功率,激光输出的最短脉宽、最高重复频率和单脉冲能量分别是 460.7 ns、313.5 kHz 和 1.25 μJ .

1 MoS₂ 可饱和吸收体的制备

为了制备高质量的 MoS₂ 可饱和吸收镜,首先需要利用液相剥离法破坏 MoS₂ 层间的范德瓦尔斯力来分离出层状 MoS₂,具体操作为:先将体块状 MoS₂ 晶体在研钵中研磨成粉末状固体,然后将 MoS₂ 粉末与无水乙醇按照 1 mg:1 mL 的浓度配比充分混合,将混合溶液连续大功率超声 4 h 之后,以 2000 r/s 的转速离心 10 min,最后取出含有少量层状 MoS₂ 的上清液待用. 将上清液以 500 r/s 的转速在准备好的纯 YAG 晶体上均匀旋涂 10 s,置于干燥箱中干燥,将残留在镜片上的乙醇溶液挥发掉之后就制成了 MoS₂ 可饱和吸收镜. 采用 AFM 对制备的 MoS₂ 样品进行微观形貌的表征,得到的分析结果如图 1 所示. 从图中可以看出,层状 MoS₂ 的厚度大约为 8 nm. 根据单层 MoS₂ 的厚度为 0.65 nm^[20],可以计算出此次制备的 MoS₂ 样品层数约为 12 层.

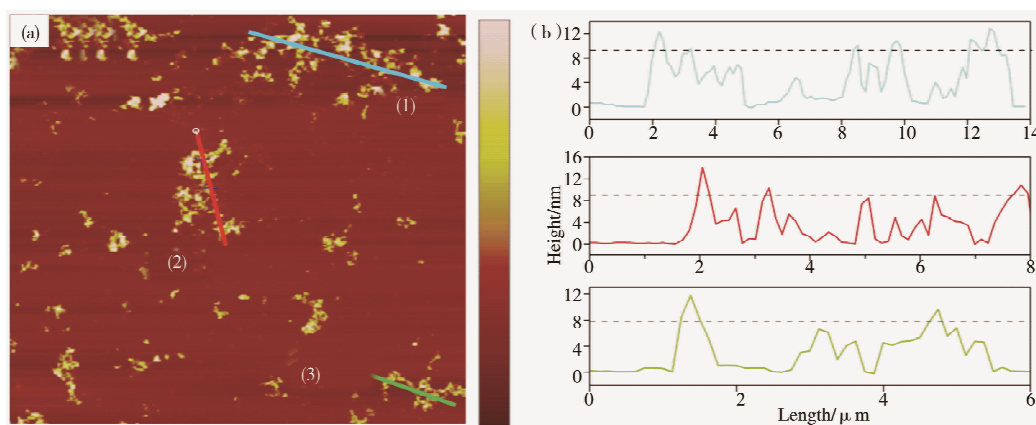


图 1 (a) AFM 下的层状 MoS₂ 形态 (b) 层状 MoS₂ 的厚度

2 实验装置

为了得到更好的输出结果,我们设计了如图 2 所示的 V 型激光谐振腔. 实验中,泵浦源采用的是中心波长为 808 nm 的光纤耦合半导体激光器,其光纤芯径为 400 μm ,数值孔径为 0.22. 泵浦光经聚焦比例为 1:1 的光束耦合系统耦合到 Nd:ScYSiO₅ 晶体中心,因而,晶体中心处光斑直径大小也为 400 μm . Nd:ScYSiO₅ 晶体的尺寸为 3 mm \times 3 mm \times 8 mm,两端面抛光且均未镀泵浦光和振荡激光的增透膜. 晶体侧面经锡箔包裹后放置在铜制夹具中,夹具两端连通水冷机,进行持续循环冷却降温,水冷机温度设置在 18 $^{\circ}\text{C}$,其目的是减少在激光运转过程中晶体产生的热效应. 谐振腔由输入镜 M₁、M₂ 和输出镜 M₃ 组成,平镜 M₁ 外腔面镀

808 nm 的减反膜,腔内面镀 1030-1100 nm 的高反膜和 808 nm 高透膜;腔镜 M_2 是一个曲率为 200 mm 的平凹镜,与腔镜 M_1 镀膜情况相同;输出镜 M_3 是一个平面镜,腔内面镀 1030-1100 nm 的部分透射膜,透过率为 $T = 3\%$. 为达到较好的调 Q 效果,将涂有多层 MoS_2 的 YAG 片放于 M_2 - M_3 的一臂中,紧靠输出镜 M_3 .

3 实验结果及分析

在实验过程中,首先对连续激光输出特性进行表征,然后将 MoS_2 -SA 插入到腔内,并通过不断调整其位置与角度,来实现稳定的调 Q 脉冲激光输出. 图 3 描述的是输出功率随泵浦功率的变化关系,调 Q 脉冲激光的输出阈值为 0.68 W,输出功率随着泵浦功率的增加而增加,二者大致呈线性关系,在吸收泵浦功率为 3.3 W 时,得到了 392 mW 的最大输出功率,激光的斜效率为 13.8%. 图 4 展示了基于 MoS_2 饱和吸收的 Nd:ScYSiO₅ 晶体调 Q 激光的脉冲宽度和重复频率与吸收泵浦功率之间的关系. 从图中可以看出,随着泵浦功率从 0.68 W 升到 3.3 W,调 Q 运转的脉冲宽度从 809.8 ns 持续下降到了 460.7 ns. 图 5(a)、(b) 是脉冲激光的最短脉冲和最大重复频率波形图,可以看出,整个脉冲序列相对稳定,抖动较小,表明调 Q 激光输出较为稳定. 图 5(c) 表示的是单脉冲能量随泵浦功率的变化关系,从图中可以看出,随着吸收泵浦功率的升高,激光输出的单脉冲能量不断增大,并在吸收泵浦功率 3.3 W 时达到最大值 1.25 μJ .

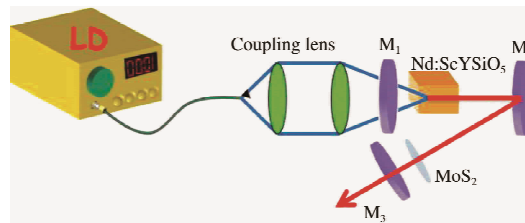


图 2 基于 MoS_2 可饱和吸收体的被动调 Q 激光器示意图

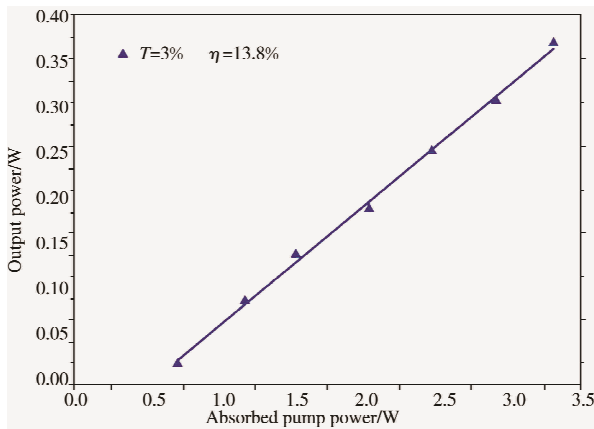


图 3 基于 MoS_2 可饱和吸收体调 Q 的 Nd:ScYSiO₅ 的平均输出功率

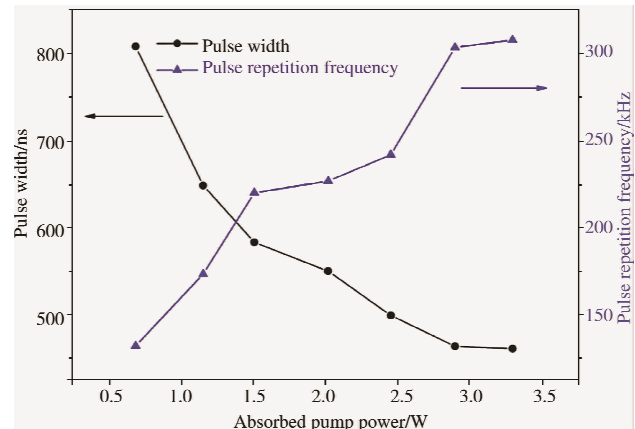


图 4 调 Q 运转时的脉冲宽度和重复频率随吸收泵浦功率的变化关系



图 5 (a) 调 Q 单脉冲波形;(b) 调 Q 脉冲序列;(c) 调 Q 运转时单脉冲能量随吸收泵浦功率的变化关系

图 6 展示的是最高泵浦功率下, Nd:ScYSiO₅ 晶体被动调 Q 激光光谱. 从图中可以看出, 是 1074.7 nm 和 1078.2 nm 的双波长激光同步输出, 其主要原因是晶格中阳离子格位的随机取代造成的晶体无序性及光谱的非均匀展宽效应. 根据之前研究结果显示, 连续运转状态下, Nd:ScYSiO₅ 晶体激光能够实现 1074.8、1076.6、1078.2 nm 三波长激光同时输出^[21], 本次实验中, 由于 MoS₂ 可饱和镜的插入损耗, 使得 1076.6 nm 的发射峰被抑制, 而最终获得 1074.7、1078.2 nm 的双波长激光同步输出.

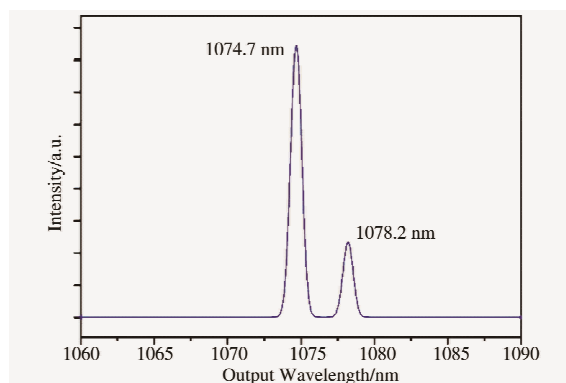


图 6 基于 MoS₂ 可饱和吸收体调 Q 的 Nd:ScYSiO₅ 的输出波长

表 1 在 1 μm 波段, 基于 MoS₂ 可饱和吸收体的被动调 Q 研究现状对比

晶体	波长 /nm	最大输出功率 /mW	单脉冲能量 /μJ	脉冲宽度 /ns	最大重复频率 /kHz	参考文献
Nd:GdVO ₄	1063	227	0.31	970	732	[22]
Nd:GYSGG	1057.28 + 1060.65	250	4.9	831	51	[17]
Nd:YAG	1064.24	23.5	1.13	2800	20.8	[23]
Nd:ScYSiO ₅	1074.7 + 1078.2	392	1.25	460.7	313.5	本文

表 1 总结了近几年来, 以 MoS₂ 作为可饱和吸收体在 1 μm 波段实现的掺 Nd³⁺ 晶体全固态调 Q 激光输出结果. 本实验结果较其他工作相比, 在最大输出功率、单脉冲能量和脉冲宽度等方面有着较大的优势. 考虑到实验中的 Nd:ScYSiO₅ 晶体端面未镀膜以及 YAG 片的插入损耗, 激光输出功率以及斜效率会有进一步的提升空间. 另外, 采用 CVD 严格控制制备 MoS₂ 的层数, 分析不同层数的可饱和吸收特性差异及其对调 Q 激光器件的影响是下一步将要深入研究的问题.

4 结论

首先利用液相剥离法制备了层状 MoS₂, 并转移到 YAG 中制成可饱和吸收镜, 并对其微观形貌进行了 AFM 表征, 结果显示实验中制备的 MoS₂ 样品厚度约为 12 层, 较为均匀. 以无序晶体 Nd:ScYSiO₅ 作为激光增益介质, 实现了稳定的双波长调 Q 激光输出, 中心波长为 1074.7、1078.2 nm. 在 3.3 W 的最大泵浦功率下, 获得了 392 mW 的平均功率输出, 激光器功率输出斜效率为 13.8%. 在最高的泵浦功率下, 获得的最短脉冲宽度为 460.7 ns、最高重复频率为 313.5 kHz, 单脉冲能量为 1.25 μJ. 实验结果表明, 层状 MoS₂ 材料是一种优异的可饱和吸收材料, 在近红外波段的激光调制中具有重大的应用潜力.

参 考 文 献

- [1] Okhotnikov O, Grudinin A, Pessa M. Ultra-fast fibre laser systems based on sesam technology: new horizons and applications[J]. New Journal of Physics, 2004, 6: 177.
- [2] Sze Y S, Hiroshi Y, Yuichi T, et al. Laser mode locking using a saturable absorber incorporating carbon nanotubes[J]. Journal of Lightwave Technology, 2004, 1: 51-56.
- [3] Andreas S, Simon R, Günter S, et al. Passive mode locking of Yb:KLuW using a single-walled carbon nanotube saturable absorber[J]. Optics Letters, 2008, 33(7): 729-731.
- [4] Xu J L, Li L, He J L, et al. Performance of large-area few-layer graphene saturable absorber in femtosecond bulk laser[J]. Applied Physics Letter, 2011, 99: 261107.
- [5] Xing G C, Guo H C, Zhang X H, et al. The physics of ultrafast saturable absorption in graphene[J]. Optics Express, 2010, 18(5): 4564-4573.
- [6] Xu J L, Li X L, He J L, et al. Efficient graphene Q-switching and mode locking of 1.34 μm neodymium lasers[J]. Optics Letters, 2012, 37(13): 2652-2654.
- [7] Jia F Q, Chen H, Liu P, et al. Nanosecond-pulsed, dual-wavelength passively Q-switched c-Cut Nd:YVO₄ laser using a few-layer Bi₂Se₃ saturable absorber[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2015, 21(1): 1601806.

- [8] Xu B, Wang Y, Peng J, et al. Topological insulator Bi_2Se_3 based Q-switched Nd:LiYF₄ nanosecond laser at 1313 nm[J]. Optics Express, 2015, 23(6):7674-7680.
- [9] Xu J L, Sun Y J, He J L, et al. Ultrasensitive nonlinear absorption response of large-size topological insulator and application in low-threshold bulk pulsed lasers[J]. Scientific Reports, 2015, 5(2):14856.
- [10] Su L B, Miao L L, Guo Z N, et al. 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.
- [11] Ma J, Lu S B, Guo Z N, et al. Few-layer black phosphorus based saturable absorber mirror for pulsed solid-state lasers[J]. Optics Express, 2015, 23(17):22643-22648.
- [12] Kong L C, Qin Z P, Xie G Q, et al. Black phosphorus as broadband saturable absorber for pulsed lasers from 1 μm to 2.7 μm wavelength[J]. Laser Physics Letters, 2016, (13):045801.
- [13] Luo Z C, Liu M, Guo Z N, et al. Microfiber-based few-layer black phosphorus saturable absorber for ultra-fast fiber laser[J]. Optics Express, 2015, 23(15):20030-20039.
- [14] 王贝贝, 高丛丛, 王国菊, 等. 基于黑磷可饱和吸收体的 Nd:YVO₄ 锁模激光器的研究[J]. 聊城大学学报(自然科学版), 2018, 31(1):45-49.
- [15] Sotor J, Sobon G, Kowalczyk M, et al. Ultrafast thulium-doped fiber laser mode locked with black phosphorus[J]. Optics Letters, 2015, 40(16):3885-3888.
- [16] Sun X L, Nie H K, He J L, et al. Passively mode-locked 1.34 μm bulk laser based on few-layer black phosphorus saturable absorber[J]. Optics Express, 2017, 25(17):20025-20032.
- [17] 王贝贝, 高雅静, 高丛丛, 等. 基于 MoS₂ 可饱和吸收体的 Nd:GYSGG 激光器双波长调 Q 及锁模的研究[J]. 聊城大学学报(自然科学版), 2017, 30(2):30-34.
- [18] 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:A47-A50.
- [19] Ge P G, Liu J, Jiang S Z, et al. Compact Q-switched 2 μm Tm:GdVO₄ laser with MoS₂ absorber[J]. Photonics Research, 2015, 3(5):256-259.
- [20] Simone B, Jacopo B, Andras K. Stretching and breaking of ultrathin MoS₂[J]. ACS Nano, 2011, 5(12):9703-9709.
- [21] Liu S D, Zheng L H, He J L, et al. Passively Q-switched Nd:Sc_{0.2}Y_{0.8}SiO₅ dual-wavelength laser with the orthogonally polarized output[J]. Optics Express, 2012, 20(20):22445-22453.
- [22] Wang S X, Yu haohai, Zhang Huaijin, et al. Broadband few-layer MoS₂ saturable absorbers[J]. Advanced Materials, 2014, 26:3538-3544.
- [23] Lin T, Sun H, Wang X, et al. Passively Q-switched Nd:YAG laser with a MoS₂ solution saturable absorber[J]. Laser Physics, 2015, 25:125805.

Passively Q-switched Nd:ScYSiO₅ Laser with Molybdenum Disulfide Saturable Absorber

WANG Qiang-guo CUI Na YAO Yong-ping LIU Shan-de

(School of Electronics and Information Engineering, Shandong University of Science and Technology, Qingdao 266590, China)

Abstract High quality multilayer Molybdenum Disulfide (MoS₂) was prepared by liquid-phase exfoliation method and transferred it to the YAG crystal to take as the saturable absorber (SA) mirror, and their morphology was characterized by Atomic Force Microscope (AFM). The results show that the number of layers of MoS₂ SA is about 12 layers. Based on the MoS₂ saturable absorber, a stable dual-wavelength Nd:ScYSiO₅ crystal laser was realized. A maximum Q-switched laser output power of 392 mW was achieved under the absorbed pump power of 3.3 W, corresponding to a slope efficiency of 13.8%. Under the maximum pump power, the shortest pulse width, maximum pulse repetition frequency and single pulse energy were 460.7 ns, 313.5 kHz and 1.25 μJ , respectively. The results demonstrate that the multilayer MoS₂ is an excellent photoelectric material with good saturable absorption characteristics in the infrared waveband.

Key words MoS₂ saturated absorber; Nd:ScYSiO₅ crystal; passively Q-switched; dual-wavelength laser