



基于层状WS₂调制激光泵浦的光学参量振荡中红外运转特性

王静 逢金波 郭鹤泽 胡新宇 周承辰 唐文婧 蒋锴 夏伟

Operation characteristics of mid-infrared optical parametric oscillation pumped by layered WS₂ modulated laser

Wang Jing Pang Jin-Bo Guo He-Ze Hu Xin-Yu Zhou Cheng-Chen Tang Wen-Jing Jiang Kai Xia Wei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 024204 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20211409

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211409>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于中红外光参量振荡器光束质量优化的90° 像旋转四镜非平面环形谐振腔型设计与分析

Design and analysis of 90° image rotating four-mirror non-planar ring resonator based on mid-infrared optical parametric oscillator beam quality optimization

物理学报. 2019, 68(17): 174201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182001>

基于二维纳米材料可饱和吸收体的中红外超快光纤激光器

Two-dimensional material as a saturable absorber for mid-infrared ultrafast fiber laser

物理学报. 2020, 69(18): 188101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200472>

基于铋纳米片可饱和吸收被动调Q中红外单晶光纤激光器

Bismuth nanosheets based saturable-absorption passively Q-switching mid-infrared single-crystal fiber laser

物理学报. 2020, 69(18): 184205 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200337>

基于光学参量振荡器的可调谐红外激光的强度噪声特性

Intensity noise of tunable infrared laser based on singly resonant optical parametric oscillator

物理学报. 2020, 69(9): 094205 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191952>

WS₂与WSe₂单层膜中的A激子及其自旋动力学特性研究

Dynamics of A-exciton and spin relaxation in WS₂ and WSe₂ monolayer

物理学报. 2019, 68(1): 017201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181769>

高激光损伤阈值Ge-As-S硫系玻璃光纤及中红外超连续谱产生

Ge-As-S chalcogenide glass fiber with high laser damage threshold and mid-infrared supercontinuum generation

物理学报. 2021, 70(4): 047801 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201324>

基于层状 WS_2 调制激光泵浦的光学参量振荡中红外运转特性*

王静^{1)†} 逢金波^{2)‡} 郭鹤泽¹⁾ 胡新宇¹⁾ 周承辰¹⁾
唐文婧¹⁾ 蒋锴¹⁾ 夏伟^{1)††}

1) (济南大学物理科学与技术学院, 济南 250022)

2) (济南大学前沿交叉科学研究院, 济南 250022)

(2021年7月30日收到; 2021年8月30日收到修改稿)

光学参量振荡器是重要的中红外相干光源. 近年来, 在激光调制方面, 二维过渡金属硫化物展现了非线性可饱和吸收特性, 因此有望成为光学参量振荡器基频激光的优良调制元件. 本工作中, 首先, 实验测量了层状二硫化钨 (WS_2) 调制固体激光的输出特性. 其次, 结合主动声光 Q 开关, 实现了主被动双调 Q 光参量振荡的运转, 得到了纳秒脉冲宽度的中红外脉冲, 并研究了 WS_2 对光参量转换的优化特性, 发现 WS_2 纳米片除了能够压缩脉冲、提高峰值功率外, 还能缓解单主动调 Q 光学参量振荡器中的“输出饱和和下降”现象, 这种现象可能起因于硫酸钛氧钾 ($KTiOAsO_4$, KTA) 的制冷不均匀. WS_2 的可饱和吸收效应能够显著压缩光斑, 减少高斯光斑的边缘能量, 因此能够缓解 KTA 的温度梯度分布, 从而优化输出特性. 最后, 基于 WS_2 的非线性透过率曲线, 考虑非均匀展宽机制和大信号下的非饱和吸收, 计算了 WS_2 的可饱和吸收特性参数, 并求解了层状 WS_2 调制光学参量振荡器的速率方程组. 本文在实验上展示了二维过渡金属硫化物对激光非线性频率变换的优化效果, 尤其是对热效应的缓解; 同时, 为二维材料调制激光的动力学模拟提供了参数依据.

关键词: 层状过渡金属硫化物, 中红外光学参量振荡器, 动力学方程, 可饱和吸收截面

PACS: 42.65.-k, 42.65.Sf, 42.65.Yj, 42.65.Lm

DOI: 10.7498/aps.71.20211409

1 引言

3—5 μm 中红外激光位于大气传输窗口和分子振动的“指纹区”, 在医学、军事、民用、科学研究等方面应用广泛, 成为近几年国内外研究的热点. 在 1 μm 基频激光的抽运下, 光学参量振荡器 (optical parametric oscillator, OPO) 能够输出 3—5 μm 波段闲频光, 成为重要的中红外相干光源^[1–3]. 相比

于外腔 OPO, 内腔光学参量振荡器 (intracavity OPO, IOPO) 能够充分利用基频激光的腔内光子数密度, 实现高转换输出. 对于 IOPO, 短脉宽、高峰值的调 Q 基频激光脉冲有利于进一步提升效率^[4,5]. 影响 IOPO 非线性转换的另一个重要因素是基频光脉冲序列稳定性. 因此, 基频激光器 Q 开关的稳定工作和脉冲压缩性能对 IOPO 具有重要意义. 在各种调 Q 方法中, 声光 (acousto-optic, AO) 或电光主动调 Q 可以获得一定重复频率的可控脉

* 国家自然科学基金 (批准号: 62005049, 51802116, 61308057)、山东省自然科学基金 (批准号: ZR2019BEM040) 和济南市资助引进创新团队项目基金 (批准号: 2018GXRC011) 资助的课题.

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: ss_wangj@ujn.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: jnbo.pang@hotmail.com

†† 通信作者. E-mail: sps_xiaw@ujn.edu.cn

冲,但其脉冲宽度通常较宽.与主动调 Q 激光器相比,采用可饱和吸收体 (saturable absorber, SA) 的被动调 Q 激光器可以产生较短的脉冲宽度.到目前为止,已经有许多种 SA 被用于获得不同波长的 Q 开关脉冲^[6-9].在这些 SA 中,二维 (two-dimensional, 2D) 过渡金属二硫化物 (transition metal dichalcogenide, TMDC) 具有层数依赖的带隙结构,能够实现近红外波段的激光调制,被认为是很前途的光调制器^[10-12].将二维 TMDC SA 应用于单主动调 Q 激光,能够在脉宽、峰值功率和运转稳定性等方面实现显著优化^[13-15],因此,基于 TMDC 的主被动双调制激光抽运的 OPO 有望在实验上实现更高效、更好稳定性的参量光输出^[16,17].

动力学速率方程能够有效预测 OPO 的运转特性^[18,19],是模拟输出结果的理论工具.对调 Q 的内腔 OPO 来说,基频激光脉冲是信号光和闲频光的增益源,因此,在建立 IOPO 的动力学模型时,要重点考虑基频激光的调制过程.对于主被动双调制 IOPO 的速率方程求解来说,SA 的可饱和吸收参数是必备的,包括基态和激发态吸收截面、激发态能级寿命、初始基态粒子数密度等.然而,由于 2D TMDC 的能级结构正在研究中^[20-22],很少有关于其可饱和吸收参数的报道,因此,难以实现 TMDC 调制激光速率方程的求解.目前,国际上对二维 TMDC 调制激光器的研究,主要集中在实验工作

上,结合动力学理论分析的研究工作较少.

本文首先自制 3.5 nm 厚的 WS_2 SA,并对其表征,尤其是非线性透过率的测量和拟合;其次,在实验上依次实现 WS_2 SA 调 Q 制的 1.06 μm 激光、单 AO 调 Q 的 IOPO 以及基于 WS_2 SA 和 AO 的主被动双调 Q 中红外 IOPO,并分析 WS_2 SA 的优化特性;最后,基于测量的非线性透过率,给出了估算 2D- WS_2 SA 可饱和吸收参数的方法,对 WS_2 +AO 主被动双调制激光抽运的 OPO 进行动力学建模,并通过计算机编程,数值求解了速率方程.

2 层状 WS_2 SA 的制备、表征和非线性透过率测量

WS_2 SA 的制备采用电子束蒸发 (e-beam evaporation, EBE) 和退火硫化的方法.首先采用电子束蒸发法在蓝宝石基片上生长约 2 nm 厚的钨层薄膜,将带有钨膜的蓝宝石片置于 800 $^\circ\text{C}$ 硫蒸气中退火,最终得到 1.4 cm \times 2 cm 尺寸的层状 WS_2 纳米片.

合成材料的特性如图 1 所示.图 1(a) 中,采用 532 nm 的激光和光探测器测量了材料的拉曼光谱,观察到两个特征峰: A_{1g} (417 cm^{-1}) 和 E_{2g}^1 (350.5 cm^{-1}).其中, A_{1g} 模与 S 原子的平面外运动有关,反映了层间的耦合.据报道, WS_2 体材料的 A_{1g} 模峰值约在 422 cm^{-1} 处,而我们的实验中获得

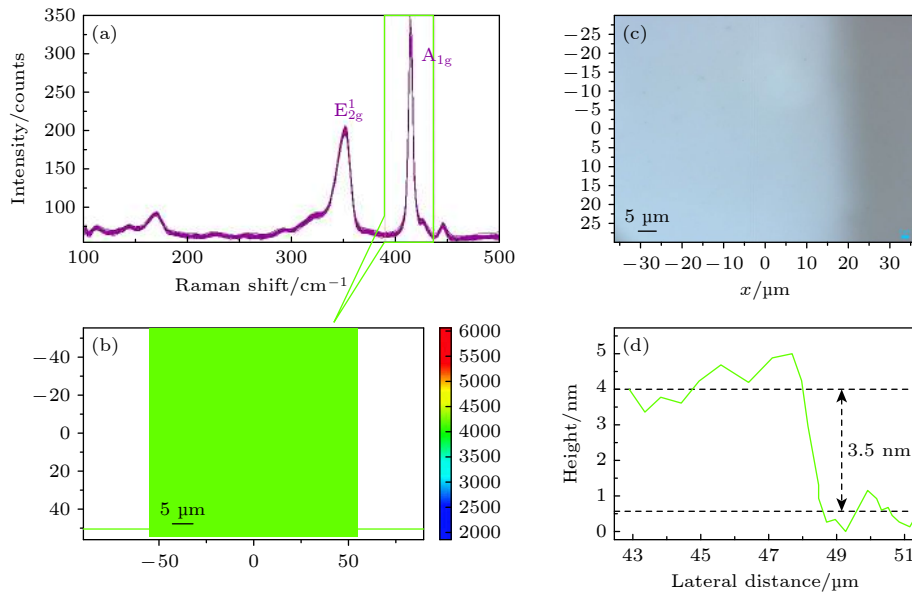


图 1 WS_2 纳米片的表征 (a) 532 nm 激光激发的拉曼光谱; (b) A_{1g} 模峰值强度的拉曼映射; (c) 光学显微光谱; (d) 原子力显微镜成像

Fig. 1. Characterization of WS_2 nanosheet: (a) Raman spectrum collected with excitation laser of 532 nm wavelength; (b) Raman mapping of peak intensity at A_{1g} mode; (c) optical microscopy; (d) atomic force microscopy.

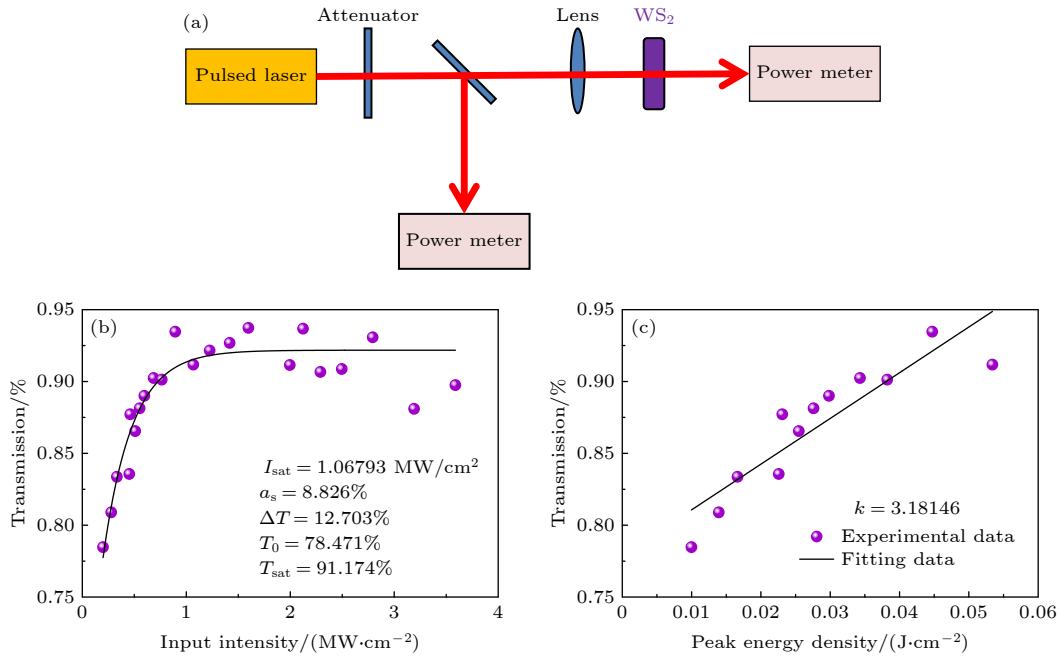


图 2 功率扫描法测量 WS₂ 纳米片的透过率 (a) 实验装置; (b) 非线性透过率曲线; (c) 低功率密度下的线性拟合

Fig. 2. Measurement of nonlinear transmittance for WS₂ SA by use of the double optical path method: (a) Experimental setup; (b) nonlinear transmission; (c) linear relation for low-power density.

了约 5 cm^{-1} 的红移, 验证了样品的层状结构 [23–25]. 图 1(b) 测量了 A_{1g} 模式强度的拉曼映射图像, 其强度的微小变化表明合成 WS₂ 的高度均匀性 [26]. 在图 1(c) 中, 使用 CX23 型光学显微镜 (Olympus, 日本) 测量了合成样品的光学显微照片, 其颜色对比度表明了 WS₂ 的少数层结构 [27]. 图 1(d) 给出了 WS₂ 的原子力显微镜 (AFM, Bruker) 的观察结果. 考虑到单层 WS₂ 的厚度约为 0.8 nm [28], 从高度剖面分析的 3.5 nm 厚度表明, 材料具有约 4 层的二维纳米结构, 与上述拉曼光谱和光学显微照片的分析结果一致.

采用双光路功率扫描法测量了 WS₂ 纳米片的非线性吸收曲线, 实验设置和测量结果如图 2 所示. 光源采用声光调制的 1064 nm 脉冲激光, 在抽运功率为 2.4 W , 脉冲重复率为 15 kHz 时, 输出 1064 nm 波长的脉冲宽度为 109 ns , 平均输出功率为 389 mW . 通过对测得的透过率曲线进行非线性拟合, 可以得到 WS₂ 纳米片的非饱和吸收损耗 (α_s) 约为 8.826% , 小信号透过率 (T_0) 为 78.471% , 饱和透过率 (T_{sat}) 为 91.174% , 于是调制深度 (ΔT) 计算为 12.703% , 饱和功率密度 (I_{sat}) 拟合为 1.06793 MW/cm^2 . 在低功率密度情况下, 透过率和峰值能量密度近似成线性关系, 通过拟合可以得到其斜率 k 约为 3.18146 [28,29].

3 实验装置与实验结果

3.1 WS₂ SA 被动调 Q 的 $1.06 \mu\text{m}$ 固体激光

基于少层 WS₂ 的可饱和吸收性质, 实验测量了 WS₂ 纳米片被动调 Q $1.06 \mu\text{m}$ 激光的输出特性 (图 3). 图 3(a) 是实验设置图, 其中, 以具有 $400 \mu\text{m}$ 芯径的 1:1 光纤耦合的 808 nm 半导体激光器作为泵浦源 (Pluto5, 洛芙科技, 中国); 激光晶体采用 $3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ 的 $\text{Nd}^{3+}:\text{YVO}_4$, 掺杂率为 0.6% (原子含量), 晶体两个端面镀有 $1.06 \mu\text{m}$ 的增透膜; 输入镜曲率半径为 200 mm , 镀有 808 nm 增透和 $1.06 \mu\text{m}$ 高反膜; 输出镜为平镜, 对 $1.06 \mu\text{m}$ 激光具有 25% 的耦合输出.

在 $1.4\text{--}3.0 \text{ W}$ 的泵浦功率下, 实验记录了脉冲激光的输出特性, 如图 3(b)–(e) 所示. 图 3(b) 显示了平均输出功率, 激光运转的阈值为 1.4 W , 实验中获得的最大平均功率为 650 mW ; 图 3(c) 是 WS₂ SA 调制的脉冲宽度, 实验中的最小脉宽约为 684 ns ; 输出激光的脉冲重复率如图 3(d) 所示, 它随着输入能量的升高而升高, 在抽运功率 3 W 下, 得到实验中最大的脉冲重复率约为 259 kHz ; 在图 3(e) 中, 计算了脉冲的峰值功率, 在 3 W 抽运功率下, 脉冲的最大峰值功率约为 3.7 W , 此时单脉冲能量为 $2.51 \mu\text{J}$.

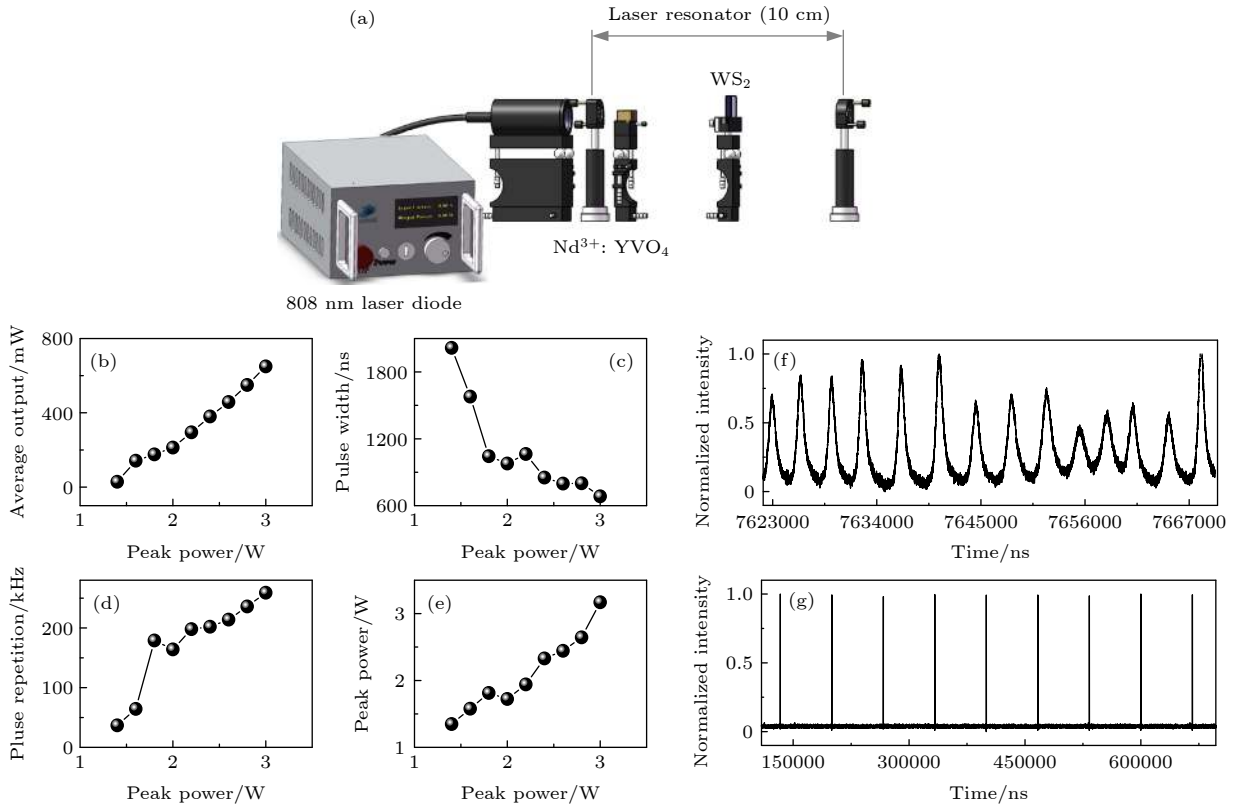


图3 WS₂ SA 被动调 Q 的 1.06 μm 激光 (a) 实验装置; (b) 平均输出功率; (c) 脉冲宽度; (d) 脉冲重复率; (e) 峰值功率; (f) WS₂ 调 Q 、1.06 μm 脉冲波形; (g) WS₂+AO 调 Q 的 1.06 μm 脉冲波形, $f_p = 15$ kHz

Fig. 3. WS₂ SA passively Q -switched 1.06 μm laser: (a) Experimental setup; (b) average output power; (c) pulse width; (d) pulse repetition rate; (e) peak power; (f) temporal pulse train from WS₂ Q -switched 1.06 μm laser; (g) temporal pulse train from WS₂+AO Q -switched 1.06 μm laser, $f_p = 15$ kHz.

由图 3(b)—(e) 可以看出, 尽管 1.06 μm 激光的光子能量小于少层 WS₂ 的禁带宽度 (> 1.3 eV), 但在我们的实验中, WS₂ 纳米片仍然展现出对 1 μm 激光的可饱和吸收效应, 这可能归因于缺陷态、边缘态和双光子吸收等机制^[30,31].

在泵浦功率为 3 W 时, 测量了输出的时域脉冲序列. 图 3(f) 给出了 WS₂ 单被动调 Q 的 1.06 μm 脉冲波形, 为了评价脉冲的峰-峰值抖动, 计算得到脉冲幅度的标准差 (standard deviation, SD) 约为 0.8216.

OPO 的高转换依赖于高功率的、稳定的基频激光, 由图 3 可以看到, WS₂ SA 单调制 1.06 μm 脉冲的峰值功率为瓦特量级, 峰-峰幅度的 SD 接近 1, 具有较低的峰值功率和较高的峰值抖动, 不利于以 KTA 为非线性介质的 OPO 参量转换. 因此, 在图 3(a) 的基础上, 引入声光调制器来管理开关时间, 以减小脉冲抖动和提高峰值功率. 在抽运功率为 3 W, 脉冲重复率为 15 kHz 时, 得到 WS₂+AO 调 Q 的 1.06 μm 脉冲波形, 如图 3(g) 所示, 其 SD 约为 0.01421.

3.2 WS₂ SA+AO 调 Q IOPO 的中红外运转

WS₂+AO 主被动双调 Q IOPO 的实验装置如图 4 所示. 非线性转换晶体采用 II 类相位匹配的 KTA 晶体 (切割角度 $\theta = 90^\circ$, $\varphi = 0^\circ$), 长度为 2.5 cm, 两端面镀有 1.06, 1.53 和 3.40 μm 的增透膜; 激光晶体和非线性晶体均采用铜块水冷, 温度严格控制在 20 $^\circ\text{C}$; 声光调制器 (I-QS041-2S4G-U5-ST1, Gooch&Housego, 英国) 的调制频率 f_p 选取 15 和 25 kHz, 声光晶体的厚度为 47 mm, 两端均镀有 1.06 μm 的增透膜; 激光晶体、非线性晶体和 WS₂ SA 均置于五维精密调整架上 (7SWM0501, 赛凡光电, 中国). 凹面镜 M₁ 即为图 3 中的输入镜; 平面镜 M₂ 镀有 1.06 μm 增透和 3.4 μm 高反膜; 平面镜 M₃ 作为输出镜, 镀有 1.06 μm 高反、1.53 μm 增透和 3.4 μm 部分反射膜 (透过率为 $T = 20\%$). M₁ 和 M₃ 构成了 1.06 μm 基频激光谐振腔, 腔长为 10 cm; M₂ 和 M₃ 构成了闲频光单谐振的 OPO 腔, 腔长为 2.8 cm.

采用 MAX500AD 型号功率计 (Coherent Inc.,

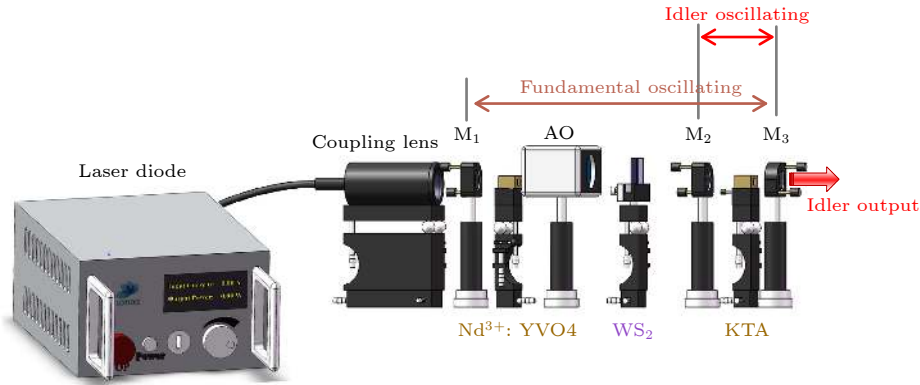

 图 4 少层 WS₂+AO 调制 KTA IOPO 的实验装置图

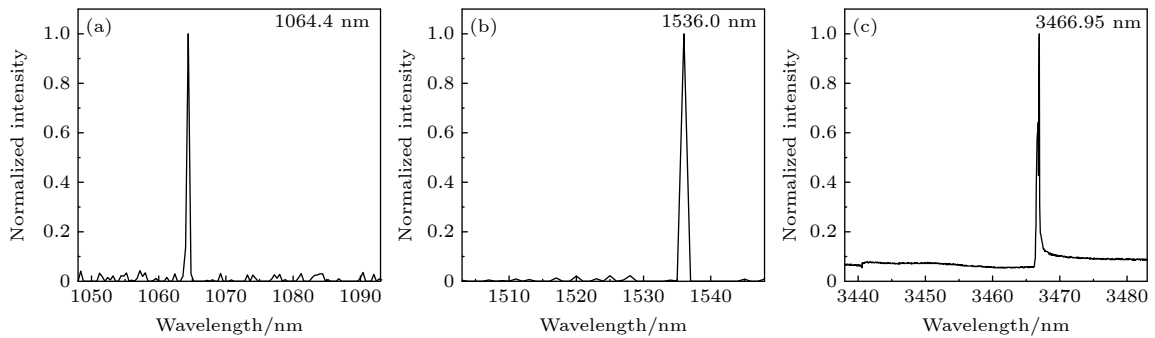
 Fig. 4. Few-layer WS₂+AO modulated KTA IOPO.


图 5 基频光 (a)、信号光 (b) 和闲频光 (c) 的光谱

Fig. 5. The spectra of the fundamental (a), signal (b), and idler (c) light.

U.S.A.) 测量激光脉冲的平均输出功率; 为了探测基频光、信号光和闲频光的时域波形, 采用响应时间小于 1 ns 的光电探测器, 型号分别为: DET10A/M (Thorlabs, U.S.A.), DET08C/M (Thorlabs, U.S.A.), PVI-3TE-6-1 × 1-T08-BaF2 (Vigo, 波兰), 脉冲波形采用 TDS620B 型示波器记录 (Tektronix, U.S.A.); 三光的光谱信息采用 MS9710C 型 (Anritsu, 日本, 分辨率为 0.1 nm) 和 7ISU301 型 (赛凡光电, 中国, 分辨率为 0.05 nm) 光谱仪记录; 基频激光的横向能量分布由 M2MS 型光束质量分析仪测定 (Thorlabs, U.S.A.).

在图 5 中, 测量了输出端 M₃ 处的参量光光谱, 由图 5 可以看出, 基频光、信号光和闲频光的中心波长分别为 1064.4, 1536.0, 和 3466.95 nm, 三光波长符合参量下转换的能量守恒定理: $h\nu_f - h\nu_s = h\nu_i$, 其中, ν_f , ν_s 和 ν_i 分别为基频光、信号光和闲频光的频率.

从图 6 可以看出 WS₂ 纳米片对 3466.95 nm 波长中红外 IOPO 运转的优化效果. 为了便于比较, 图 6(a)—(d) 测量了没有 WS₂ SA 时声光单调

Q IOPO 闲频光的输出特性; 图 6(e)—(f) 测量了 WS₂ SA+AO 调 Q IOPO 闲频光的输出特性.

图 6(a),(e) 给出了调 Q IOPO 闲频光的平均输出功率. 值得注意的是, 图 6(a) 中, 没有 WS₂ SA 时, AO 单调 Q IOPO 的中红外输出功率 (P_{out}) 随着泵浦功率 (P_{pump}) 的提升趋于饱和, 并在 $P_{pump} = 10$ W ($f_p = 15$ kHz), 10.6 W ($f_p = 25$ kHz) 时达到最高输出, 随着 P_{pump} 的进一步提升, P_{out} 快速下降, 这种“输出饱和和下降”的现象可能是由于实验中 KTA 晶体的制冷不均匀引起的 [32–34]. 基于 KTA 的 OPO 走离角和有效非线性系数如图 7(a) 所示 [35,36], 对 II 类相位匹配 KTA 晶体来说, $\theta = 90^\circ$ 保证了最小的走离角和最大的转换效率. 实验中, KTA 晶体的制冷边界与振荡光束中心之间产生温度梯度分布, 从而产生折射率的梯度变化, 使振荡光束中非中心入射光线的传播方向朝光轴弯曲, $\theta \neq 90^\circ$, 降低转换效率 [37].

在图 6(e) 中, 虽然 WS₂ 的插入损耗使得 WS₂ SA+AO 调 Q IOPO 的中红外输出要低于单 AO 调 Q IOPO, 但也消耗了基频激光的光子数密度,

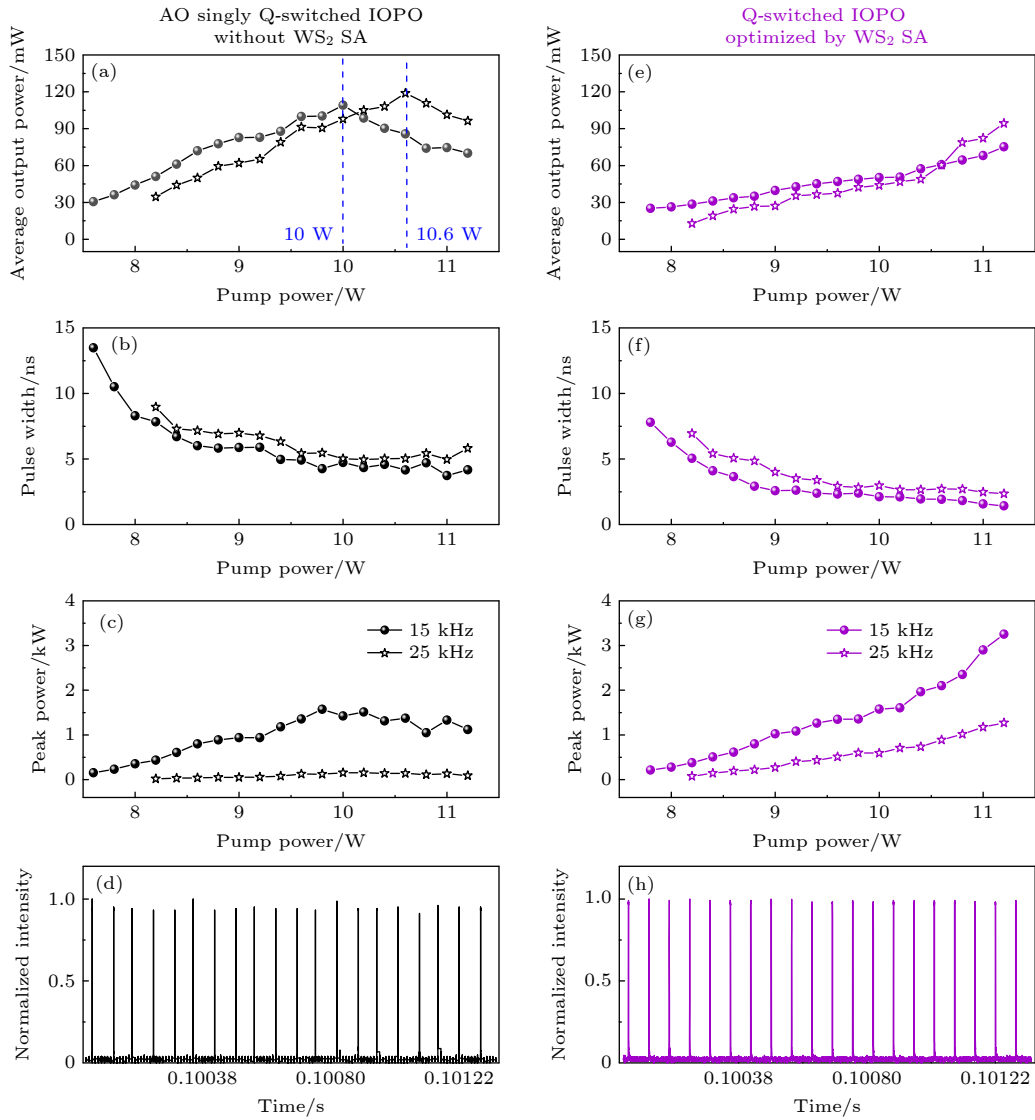


图 6 调 Q IOPO 的中红外闲频光输出特性 (a), (e) 平均输出功率; (b), (f) 输出脉冲宽度; (c), (g) 峰值功率; (d), (h) 输出脉冲序列. (a)–(d) AO 单调 Q IOPO 的输出结果; (e)–(h) WS_2 SA+AO 双调 Q IOPO 的输出结果
 Fig. 6. Output characteristics of Q -switched IOPOs: (a), (e) Average output power; (b), (f) pulse width; (c), (g) peak power; (d), (h) pulse train; (a)–(d) output of AO Q -switched IOPO; (e)–(h) output of WS_2 SA+AO Q -switched IOPO.

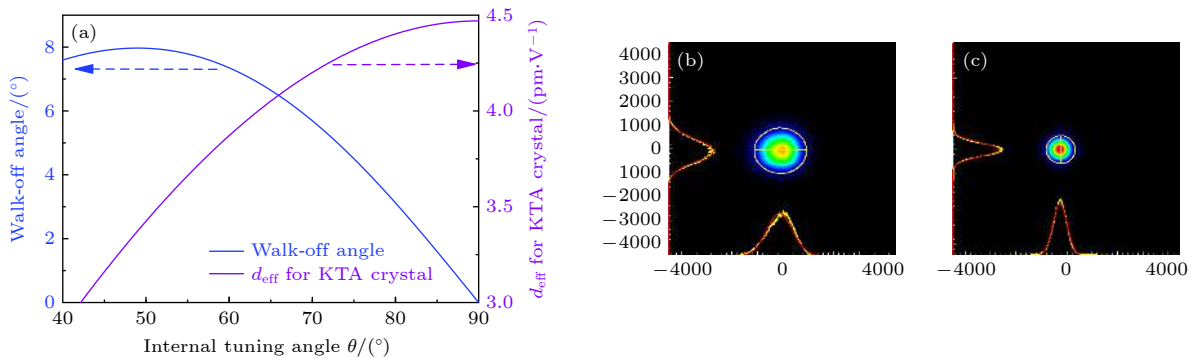


图 7 (a) 走离角、有效非线性系数与相位匹配角 θ 的关系; (b) AO 单调 Q 的 1.06 μm 基频光的光斑, 高斯光束质量因子 $M_x^2 = 3.02$, $M_y^2 = 2.19$, 光束半径为 798 μm ; (c) WS_2 +AO 双调 Q 的 1.06 μm 基频光的光斑, 高斯光束质量因子 $M_x^2 = 1.69$, $M_y^2 = 1.51$, 光束半径为 451 μm
 Fig. 7. (a) Walk-off angle and d_{eff} versus θ ; (b) 1.06 μm fundamental-light beam from AO Q -switched laser, $M_x^2 = 3.02$, $M_y^2 = 2.19$, beam radius of 798 μm ; (c) 1.06 μm fundamental-light beam from WS_2 +AO Q -switched laser, $M_x^2 = 1.69$, $M_y^2 = 1.51$, beam radius of 451 μm .

降低了 KTA 处的热效应. 另外, 在图 7(b), (c) 中测量了 1.06 μm 基频光束光斑. 可以看到, 加入 WS_2 后, 除了光束质量得到了提高, 光束半径也被显著压缩, 这可能是由于 WS_2 的可饱和吸收效应消耗了高斯光束的边缘部分能量, 使光束能量集中于中心位置, 缓解了“输出饱和下降”现象. 需要说明的是, 当 $P_{\text{pump}} > 11.2 \text{ W}$ 后, 即使 WS_2 能够压缩光斑, WS_2 SA+AO IOPO 的输出也会出现饱和, 因此 SA 的加入实际上是延缓了输出饱和现象的出现.

图 6(b), (f) 中测量了 3466.95 nm 输出脉冲的时域宽度. 可以看到, 15 kHz 调制频率的脉冲宽度要略低于 25 kHz 的. 当泵浦功率为最大值 11.2 W, 脉冲重复率为 15 kHz 时, AO 单调制的最小脉冲宽度为 4.17 ns, 而 WS_2 SA+AO 调 Q IOPO 的最小脉冲宽度为 1.42 ns. 由此可见, 由于 WS_2 的可饱和吸收作用, 中红外输出脉冲被压缩了约 67%.

基于平均输出功率和脉冲宽度, 在图 6(c), (g) 中计算了中红外峰值功率. 在图 6(c) 中, 由于“输出饱和和下降”, 峰值功率随着泵浦的提升而趋于饱和, 随后缓慢下降; 而在图 6(d) 中, 由于 WS_2 的插入损耗和可饱和吸收特性, WS_2 SA+AO IOPO 的中红外输出峰值功率快速提升, 在 $P_{\text{pump}} = 11.2 \text{ W}$, $f_p = 15 \text{ kHz}$ 时, 得到实验中的最高峰值功率为 3.26 kW, 比 AO 单调制情况下提升了约 1.91 倍.

图 6(d), (h) 记录了 $P_{\text{pump}} = 11.2 \text{ W}$, $f_p = 15 \text{ kHz}$ 时的闲频光脉冲序列. 图 6(d) 中脉冲抖动的 SD 约为 9.42%, 而图 6(h) 中的 SD 约为 1.92%, 因此, WS_2 SA 使脉冲峰值稳定性提升了约 79.62%.

4 动力学理论分析

基态吸收截面 σ_g , 激发态吸收截面 σ_e , 基态初始粒子数 n_{y0} 和激发态粒子寿命 τ_y 是反映 SA 可饱和吸收的重要特性参数, 也是动力学方程求解的必备参数. 在之前的工作中^[16,17], 基于脉冲光峰值能量密度与传播距离的微分方程, 得到了小信号和大信号近似下透过率与吸收的关系, 从而求出了可饱和吸收参数. 然而, 在大信号近似下, SA 对光的吸收降低, 除了需要考虑材料饱和吸收外, 还应考虑非饱和吸收. 因此, 基于之前工作, 可将饱和透过率的计算公式修正为

$$T_{\text{sat}} = \exp(-\sigma_e n_{y0} l_y - \alpha_s). \quad (1)$$

根据修正公式, 考虑非均匀加宽机制, 对 3.5 nm 厚 WS_2 片的可饱和吸收参数计算值如表 1 所示,

这些计算值与其他报道相符, 符合 TMDC 的典型值范围^[38,39].

表 1 实验制备 3.5 nm WS_2 SA 可饱和吸收特性的关键参数

Table 1. The key parameters for saturable absorption properties of 2D- WS_2 SA.

Parameters	Values
σ_g/cm^2	1.732×10^{-17}
σ_e/cm^2	4.758×10^{-19}
$\tau_y/\mu\text{s}$	400.6
l_y/nm	3.5
n_{y0}/cm^{-3}	1.741×10^{22}

基于基频光、信号光和闲频光的光子数密度变化规律, 考虑基频光增益介质的翻转粒子数密度和 SA 可饱和吸收上能级的粒子数密度变化, 建立主被动双调 Q IOPO 的速率方程组 (2)—(6)^[16,40].

$$\begin{aligned} \frac{dE_p(t)}{dt} = & \frac{1}{2t_r} [2\sigma_l g n(t) - (\sigma_g - \sigma_e) l_y n_{y1}(t) \\ & - \sigma_e l_y n_{y0} - \delta_T(t) - \delta_a(t) - L] E_p(t) \\ & - \frac{\delta\omega_p l_{\text{KTP}}}{4\varepsilon_p l} E_s(t) E_i(t), \quad (2) \end{aligned}$$

$$\frac{dE_s(t)}{dt} = -\frac{E_s(t)}{2\tau_s} + \frac{\delta\omega_s l_{\text{KTP}}}{4\varepsilon_s l_{\text{opo}}} E_p(t) E_i(t), \quad (3)$$

$$\frac{dE_i(t)}{dt} = -\frac{E_i(t)}{2\tau_i} + \frac{\delta\omega_i l_{\text{KTP}}}{4\varepsilon_i l_{\text{opo}}} E_p(t) E_s(t), \quad (4)$$

$$\frac{dn(t)}{dt} = R_{in} - \frac{n(t)}{\tau} - \frac{\sigma c \varepsilon_p n(t)}{4\hbar\omega_p} E_p^2(t), \quad (5)$$

$$\begin{aligned} \frac{dn_{y1}(r, t)}{dt} = & \frac{n_{y0} - n_{y1}(r, t)}{\tau_y} \\ & - \frac{\varepsilon_p}{4\hbar\omega_p} \sigma_g c n_{y1}(r, t) E_p^2(r, t), \quad (6) \end{aligned}$$

其中, $E_j(t)$ ($j = p, s, i$) 是基频光、信号光、闲频光的电场振幅; $n(t)$ 是增益介质的翻转粒子数密度; $n_{y1}(t)$ 是 SA 的激发态粒子数密度. 其他参数的物理意义及数值见表 2 所示.

基于表 1 和表 2 的参数值, 编程数值求解速率方程 (5)—(6), 拟合结果如图 8 所示. 图 8(a)—(c) 是 $P_{\text{pump}} = 11.2 \text{ W}$, $f_p = 15 \text{ kHz}$ 时, WS_2 +AO 调 Q IOPO 基频光、闲频光和信号光的波形, 图 8(d)—(f) 是 AO 单调 Q IOPO 的三光波形, 以作对比. 由图 8 可以看出, 速率方程的计算值与实验值拟合得较好; 无论在理论还是实验上, WS_2 纳米片的可饱和吸收特性使三光的脉冲持续时间均得到了压缩.

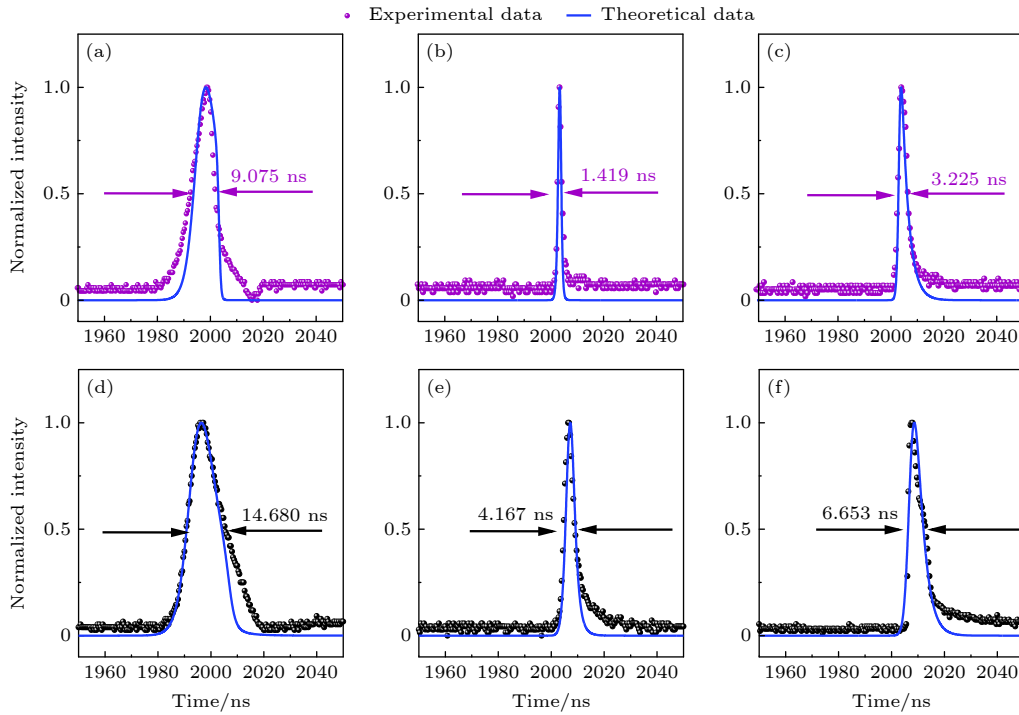


图 8 $P_{\text{pump}} = 11.2 \text{ W}$, $f_p = 15 \text{ kHz}$ 时, 基频光、闲频光、信号光的时域波形 (a) $\text{WS}_2 + \text{AO}$ 调 Q IOPO 的基频光波形; (b) $\text{WS}_2 + \text{AO}$ 调 Q IOPO 的闲频光波形; (c) $\text{WS}_2 + \text{AO}$ 调 Q IOPO 的信号光波形; (d) AO 调 Q IOPO 的基频光波形; (e) AO 调 Q IOPO 的闲频光波形; (f) AO 调 Q IOPO 的信号光波形

Fig. 8. Temporal pulses of fundamental light, idler light, and signal light at $P_{\text{pump}} = 11.2 \text{ W}$, $f_p = 15 \text{ kHz}$: (a) Fundamental pulse from $\text{WS}_2 + \text{AO}$ Q -switched IOPO; (b) idler pulse from $\text{WS}_2 + \text{AO}$ Q -switched IOPO; (c) signal pulse from $\text{WS}_2 + \text{AO}$ Q -switched IOPO; (d) fundamental pulse from AO Q -switched IOPO; (e) idler pulse from AO Q -switched IOPO; (f) signal pulse from AO Q -switched IOPO.

表 2 速率方程中的其它参数

Table 2. The other parameters in rate equations.

Parameters	Meaning	Values
σ/cm^2	Nd:YVO ₄ 的受激发射截面	1.3×10^{-18}
t_{AO}/ns	声光的开关时间	14
$\tau/\mu\text{s}$	Nd:YVO ₄ 的受激发射寿命	95
$d_{\text{eff}}/(\text{pm}\cdot\text{V}^{-1})$	KTA 的有效非线性系数	4.47
n_1	1064 nm 激光在 Nd:YVO ₄ 中的折射率	2.183
n_2	1064 nm 激光在 AO 中的折射率	1.600
n_p	1064 nm 激光在 KTA 中的折射率	1.868
n_s	1536 nm 激光在 KTA 中的折射率	1.854
n_i	3467 nm 激光在 KTA 中的折射率	1.817

然 $1.06 \mu\text{m}$ 波长光子不足以激发少层 WS_2 的本征跃迁, 但是 WS_2 仍然能够对 $1 \mu\text{m}$ 激光实现可饱和吸收调制; 实验测量了 $\text{WS}_2 + \text{AO}$ 调 Q IOPO 的中红外输出特性, 发现 WS_2 对调 Q IOPO 闲频光的优化作用: 缓解了“输出饱和下降”的问题、压缩了脉冲宽度、提高了峰值功率; 最后, 在之前工作的基础上, 考虑大信号近似下的非饱和吸收损耗, 修正了 SA 可饱和吸收参数的理论计算方法, 并将计算的 WS_2 纳米片参数值用于动力学研究, 数值求解了基于 WS_2 SA 的中红外 IOPO 速率方程, 理论值与实验值符合得较好.

5 结 论

本文首先采用 EBE 和退火硫化的方法制备了 3.5 nm 厚的 WS_2 纳米片, 并对其性能进行了表征, 重点测量、拟合了反映其可饱和吸收特性的非线性透过率; 其次, 将制备的 WS_2 纳米片用于 $1.06 \mu\text{m}$ 的固体激光调制, 实验测量了其输出特性, 发现虽

参考文献

- [1] Loparo Z E, Ninnemann E, Ru Q, Vodopyanov K L, Vasu S S 2020 *Opt. Lett.* **45** 491
- [2] Hao Q Q, Zong M Y, Zhang Z, Huang H, Zhang F, Liu J, Liu D H, Su L B, Zhang H 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 184205 (in Chinese) [郝倩倩, 宗梦雨, 张振, 黄浩, 张峰, 刘杰, 刘丹华, 苏良碧, 张晗 2020 物理学报 **69** 184205]
- [3] Ashik A S, O'Donnell C F, Kumar S C, Ebrahim-Zadeh M, Tidemand-Lichtenberg P, Pedersen C 2019 *Photonics Res.* **7** 783

- [4] Wang J, Zhao S, Yang K, Li D, Li G, An J 2007 *J. Opt. Soc. Am. B* **24** 2521
- [5] Yu Y J, Chen X Y, Cheng L B, Wang C, Wu C T, Dong Y, Li S T, Jin G Y 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 224215 (in Chinese) [于永吉, 陈薪羽, 成丽波, 王超, 吴春婷, 董渊, 李述涛, 金光勇 2015 物理学报 **64** 224215]
- [6] Liu F Q, Xia H R, Pan S D 2007 *Opt. Laser Technol.* **39** 1449
- [7] Zhang H, Zhao J, Yang K, Zhao S, Li T, Li G, Zhao B 2014 *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electronics* **21** 79
- [8] Yang X, Peng Z, Xie W, Li L 2018 *Opt. Laser Technol.* **98** 19
- [9] Long H, Hu J W, Wu F G, Dong H F 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 188102 (in Chinese) [龙慧, 胡建伟, 吴福根, 董华锋 2020 物理学报 **69** 188102]
- [10] Tian K, Li Y, Yang J 2019 *Appl. Phys. B* **125** 2125
- [11] Su X, Zhang B, Wang Y, Guan H E, Guo L I, Lin N A 2018 *Photonics Res.* **6** 498
- [12] Du W, Li H P, Lan C, Li C, Liu Y 2020 *Opt. Express* **28** 11514
- [13] Ma Y, Sun H, Ran B, Zhang S, Lv Z 2020 *Opt. Laser Technol.* **126** 106084
- [14] Wang Y, Liu S, Wang J, Wang H, Wang T, Wang Y 2020 *IEEE Photonic. Tech. L.* **32** 831
- [15] Niu Z, Feng T, Pan Z, Yang K, Gao K 2020 *Opt. Mater. Express* **10** 752
- [16] Wang J, Pang J B, Liu S P 2019 *Opt. Express* **27** 36474
- [17] Wang J, Pang J, Liu S, Song P, Xia W 2020 *Infrared Phys. Techn.* **8** 103525
- [18] Sun Y, Bai Y, Li D 2018 *Opt. Express* **25** 21037
- [19] Oshman M, Harris S 1968 *IEEE J. Quantum Elect.* **5** 206
- [20] Kim Y S, Kang S, So J P, Kim J C, Lee C H 2021 *Sci. Adv.* **7** eabd7921
- [21] Li M, Sinev I, Benimetskiy F, Ivanova T, Khanikaev A B 2021 *Nat. Commun.* **12** 1
- [22] Ling H, Li R, Davoyan A R 2021 *ACS Photonics* **8** 721
- [23] Berkdemir A, Gutiérrez R, Humberto, Botello-Méndez R 2013 *Sci. Rep.* **3** 1755
- [24] Cong C, Shang J, Wu X, et al. 2014 *Adv. Opt. Mater.* **2** 131
- [25] Peimyoo N, Shang J, Cong C, Shen X, Wu X 2013 *ACS Nano.* **7** 10985
- [26] Xu K, Wang Z, Du X 2013 *Nanotechnology* **24** 465705
- [27] Liu Z, Amani M, Naimaei S 2014 *Nat. Commun.* **5** 5246
- [28] Chen Y, Zhao C, Huang H, Chen S, Tang P, Wang Z, Lu S, Zhang H, Wen S, Tang D 2013 *J. Lightwave Technol.* **31** 2857
- [29] Shimony Y, Burshtein Z, Kalisky Y 1995 *IEEE J. Quantum Elect.* **30** 1738
- [30] Zhang S, Dong N, Mcevoy N 2015 *Acs Nano* **9** 7142
- [31] Wang S, Yu H, Zhang H, Wang A, Wang J 2014 *Adv. Mater.* **26** 3538
- [32] Iliiev H, Chuchumishev D, Buchvarov I 2010 *Opt. Express* **18** 5754
- [33] Yao J Q, Yu Y Z, Wang P, Wang T, Zhang B G, Ding X, Chen J 2001 *Chinese Phys. Lett.* **18** 1214
- [34] Zheng J, Zhao S, Wang Q 2001 *Opt. Commun.* **199** 207
- [35] Zhu Y S, Lan G, Li T, Niu R H 2007 *Laser Technol.* **5** 551 (in Chinese) [朱雅琛, 兰戈, 李彤, 牛瑞华 2007 激光技术 **5** 551]
- [36] Bian J T, Kong H, Xu H P, Ye Q, Sun X Q 2021 *Chinese J. of Lasers* **48** 249 (in Chinese) [卞进田, 孔辉, 徐海萍, 叶庆, 孙晓泉 2021 中国激光 **48** 249]
- [37] Tang Y, Rae C F, Rahlff C, Dunn M H 1997 *J. Opt. Soc. Am. B* **14** 3442
- [38] Coehoorn R, Haas C, Dijkstra J 1987 *Phys. Rev. B* **35** 6195
- [39] Zhao S, He D, He J 2018 *Nanoscale* **10** 9536
- [40] Xiao G, Bass M, Acharekar M 1998 *IEEE J. Quantum Elect.* **34** 2241

Operation characteristics of mid-infrared optical parametric oscillation pumped by layered WS₂ modulated laser*

Wang Jing^{1) # †} Pang Jin-Bo^{2) # ‡} Guo He-Ze¹⁾ Hu Xin-Yu¹⁾
 Zhou Cheng-Chen¹⁾ Tang Wen-Jing¹⁾ Jiang Kai¹⁾ Xia Wei^{1) † ‡}

1) (*School of Physics and Technology, University of Ji'nan, Ji'nan 250022, China*)

2) (*Institute for Advanced Interdisciplinary Research (IAIR), University of Ji'nan, Ji'nan 250022, China*)

(Received 30 July 2021; revised manuscript received 30 August 2021)

Abstract

Optical parametric oscillator (OPO) is an important mid-infrared coherent light source. Two-dimensional (2D) transition metal dichalcogenide (TMDC) with nonlinear absorption of near-infrared-wavelength light is expected to be a prospective modulating switch for OPO's fundamental laser. In this work, firstly, the characteristics of a home-made 3.5nm-thick tungsten disulfide (WS₂) sample are measured and analyzed. The nonlinear transmission is figured and fitted, revealing the performance of WS₂'s saturable absorption. Then, the output characteristics of WS₂ saturable absorber (SA) modulated solid-state laser are measured experimentally. Although the photon energy of 1.06 μm-wavelength laser is less than the bandgap energy of 3.5nm WS₂, the sample still exhibits the saturable absorption. This may be attributed to the mechanisms of defect-induced absorption, coexistence of states, edge-state of material, two-photon absorption, etc. Secondly, combined with active acousto-optic (AO) modulator, the active and passive Q-switched OPO with idler-light oscillation are implemented, and the nanometer pulse-width mid-infrared pulse is obtained. The implementation of AO modulator is to manage the regular switching time to reduce the pulse peak-to-peak vibration of fundamental light and improve the peak power. The optimal characteristics of WS₂ for OPO are studied. Based on the saturable absorption characteristics, the output pulse is compressed by 60%, the peak power is improved by 191%, and the stability of pulse train is improved by 79.62%. Especially, the insertion of WS₂ nanosheet could alleviate the "output saturation and drop" phenomenon in singly active-Q-switched OPO. This phenomenon may origin from the uneven refrigeration of KTA. Because the saturable absorption effect of WS₂ can significantly reduce the transverse area of Gaussian beam, it can alleviate the temperature gradient distribution of KTA and optimize the output characteristics. Finally, based on the nonlinear transmittance curve measured for WS₂, the absorption cross section of ground state and excited state are calculated to be $1.732 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ and $4.758 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$, respectively, and the lifetime of excited-state energy level and the initial population density of ground state are evaluated to be 400.6 μs and $1.741 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$, respectively, by considering the inhomogeneous-broadening mechanism and unsaturated absorption under large signal. The rate equations of layered-WS₂ modulated optical parametric oscillator are solved. This study shows the optimization effect of 2D TMDC on nonlinear conversion of laser, especially the mitigation of thermal effect. At the same time, it provides a parameter basis for the dynamic simulation of two-dimensional material modulated laser.

Keywords: layered transition metal dichalcogenide, mid-infrared optical parametric oscillator, dynamical equation, saturable absorption cross section

PACS: 42.65.-k, 42.65.Sf, 42.65.Yj, 42.65.Lm

DOI: 10.7498/aps.71.20211409

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 62005049, 51802116, 61308057), the Natural Science Foundation of Shandong Province, China (Grant No. ZR2019BEM040) and the Jinan Innovation Team Project Fundation, China (Grant No. 2018GXRC011).

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: ss_wangj@ujn.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: jinbo.pang@hotmail.com

†† Corresponding author. E-mail: sps_xiaw@ujn.edu.cn