

石墨烯被动锁模光纤激光器的研究进展

宋浩青 杨爱英

(北京理工大学光电学院,北京 100081)

摘要:自2009年石墨烯(Graphene)材料被成功用于产生超短脉冲以来,出现了多种腔形、多种波长、多种脉冲特性的锁模激光器。利用石墨烯可饱和吸收特性制成的锁模器件具有稳定性好、响应波长广、恢复时间短、插入损耗小等多方面的优势,是目前超短脉冲领域的研究热点。重点对石墨烯被动锁模光纤激光器的研究进展进行了总结,并针对该领域面临的问题,指出其发展趋势。

关键词:石墨烯;可饱和吸收;被动锁模;光纤激光器

中图分类号: O434 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3969/j.issn.1001-5078.2013.02.004

Research progress of graphene passively mode-locked fiber lasers

SONG Hao-qing ,YANG Ai-ying

(School of Optoelectronics ,Beijing Institute of Technology ,Beijing 100081 ,China)

Abstract: Since graphene was used successfully to generate ultrashort laser pulse in 2009 ,many mode-locked lasers have emerged with various cavity ,wavelength and pulse characteristics. Mode-lockers based on graphene' saturable absorption are research hot spot due to their outstanding properties including good stability ,wide operating bandwidth ,short recovery time ,low insertion loss and so on. In this paper ,the research progress of graphene passively mode-locked fiber lasers are reviewed ,and the future development of this filed is discussed.

Key words: graphene; saturable absorption; passively mode-locked; fiber lasers

1 引言

被动锁模激光器可以产生皮秒(ps)或飞秒(fs)级的超短脉冲,在高速光通信、非线性光学、生物医学等众多领域有着广泛的应用。其中,光纤激光器又因为结构简单紧凑、稳定性高、成本低、容易集成等优点,一直受到极大的关注。目前,被动锁模光纤激光器中用到的技术主要有利用非线性光纤环境(NPLM)或非线性偏振旋转(NPR)实现的“人造”快速可饱和吸收效应和利用材料具有的“真实”快速可饱和吸收效应两类。前者基于腔内的非线性效应,因此相位敏感,实用化程度低。染料是最早被应用的可饱和吸收材料,但由于它使用不便且有剧毒性,逐渐被半导体饱和吸收镜(SMSAM)取代。SMSAM

是将半导体量子阱和布拉格镜结合起来,对入射光进行可饱和吸收和反射的装置^[1]。该技术已相对成熟,是目前商用被动锁模光纤激光器的主流技术。然而半导体反射镜也有不足之处:需要复杂、昂贵的半导体生产设备,较大的厚度引起较大的耦合损耗,响应带宽比较窄等。

新型碳纳米材料相继被证实具有快速可饱和吸收的光电特性,开辟了锁模材料的新领域。2003年,一维碳材料纳米管(Nanotube)被首次用于激光

基金项目:国家自然科学基金项目(No. 60978007; No. 61027007; No. 61177067)资助。

作者简介:宋浩青(1988-),男,硕士生,研究方向为石墨烯材料光电特性、超短脉冲激光器。

收稿日期:2012-06-20;修订日期:2012-06-30

锁模并获得成功;2009年,二维碳材料石墨烯(Graphene)也被成功用于被动锁模。碳纳米管与半导体器件相比,具有恢复时间快、饱和光强低、制备处理容易等诸多优点^[2],而石墨烯材料在某些方面性能更优,例如,由于石墨烯具有线性能带结构,其响应与波长无关,工作光谱范围更广,耦合损耗更小;由于石墨烯的二维平面结构,其饱和光强更低,稳定性也更好。

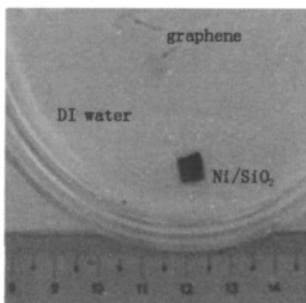
碳纳米管锁模光纤激光器的研究开始得较早,成果也较多,已经有相关文章对此进行了综述^[2]。本文重点回顾石墨烯锁模光纤激光器近年来的研究进展,考虑到该领域还处于探索阶段,将以研究团队为线索进行总结,并分析面临的问题,预测其发展趋势。

2 国外研究进展

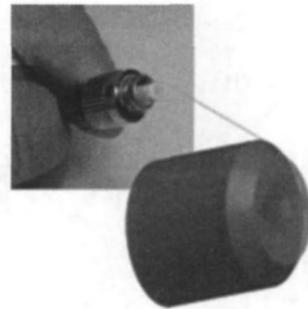
2.1 南洋理工大学

Bao Qiaoliang, Zhang Han 等人在石墨烯锁模光纤激光器方面做了大量开创性地研究。主要包括:①掺铒光纤锁模激光器的实现;②大功率锁模光纤激光器的实现;③正常色散腔内耗散孤子的实现;④掺铒光纤锁模激光器的实现;⑤锁模矢量脉冲的实验观察等。

2009年,他们利用化学气相沉积法(CVD)得到大面积、高结晶度的少层石墨烯薄膜,并将其夹于两个光纤套管头之间,制成了透射式可饱和吸收器件,如图1所示。锁模器被组合进由一段6.4 m长的掺铒光纤(10 ps/km/nm)和一段105.3 m的单模光纤(18 ps/km/nm)组成的环形腔内,如图2所示。腔内所有器件偏振无关,以排除非线性偏振旋转导致锁模的可能性。最终在1565 nm中心波长处得到了脉冲宽度756 fs,具有明显克尔边带的锁模孤子脉冲,如图3所示。其重复频率为1.79 MHz,与光束在腔内的往返时间一致。实验表明石墨烯具有可饱和的吸收特性,并可用于光纤激光器的锁模运行^[3]。



(a) CVD法制成的自由态多层石墨烯薄膜



(b) 加载有薄膜的光纤套管概念图

图1 CVD石墨烯膜锁模器件制作示意图

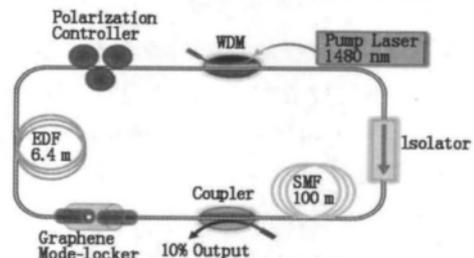
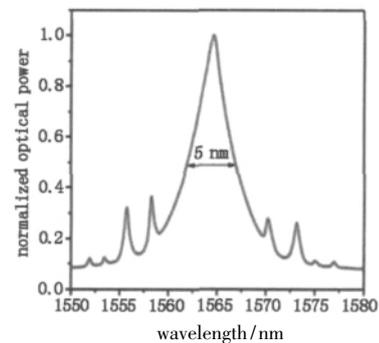
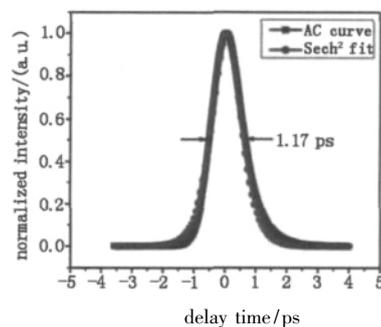


图2 石墨烯锁模掺铒光纤环形腔激光器示意图



(a) 自相关曲线



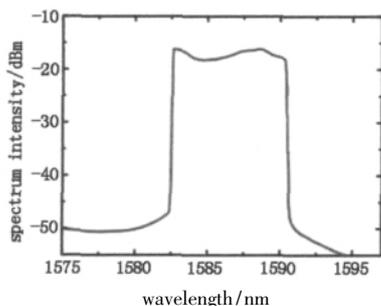
(b) 光谱图

图3 掺铒光纤环形腔激光器输出

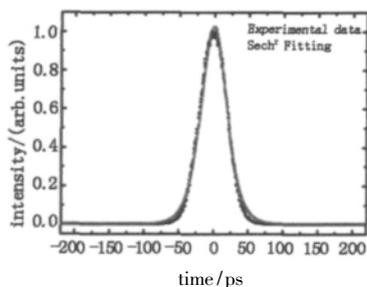
随后,他们使用了新的锁模器件制作方法,将石墨烯和聚合物(PVDF)溶液融合,再利用静电纺丝机制成了约10 μm厚的石墨烯-聚合物纳米复合材料,并测试证实材料具有可饱和吸收特性。5 m掺铒光纤(-32 ps/km/nm)和23.5 m单模光纤(18 ps/km/nm)组成环形腔。由于腔内总色散为反常色散,观察到了明显的克尔边带,中心波长1589.68 nm,3 dB带宽约5 nm,脉冲宽度694 fs,时

间带宽积为 0.412,说明脉冲有轻微啁啾。实验中发现当泵浦功率 3.2 W,输出功率高达 17 dBm,实验证明石墨烯具有很高损伤阈值,可以作于高功率光纤激光锁模^[4]。

他们还研究了正常色散腔产生耗散孤子情况。在环形腔内加入一段 118 m 的色散补偿光纤 (-2 ps/km/nm) 总腔色散值为 0.3047 ps²,脉冲被整形形成耗散孤子。得到光谱具有典型的陡峭边缘,3 dB 谱宽约 7.2 nm,脉冲宽度 49 ps,时间带宽积 44.3,表明脉冲具有很大的频率啁啾,如图 4 所示。通过调节腔内滤波器,实现了从 1570 ~ 1600 nm 的波长连续可调谐^[5]。



(a) 光谱图



(b) 时域脉冲图

图4 耗散孤子

他们又将石墨烯锁模器应用于掺镜光纤激光器中,得到了波长 1064 nm 附近的锁模脉冲。双向泵浦一段 72 cm 长的掺镜光纤,其他腔结构与掺镜光纤激光器相似,如图 5 所示。获得了谱宽 1.32 nm,脉宽 551.9 ps 的耗散孤子。实验证明石墨烯具有非常大的响应带宽^[6]。

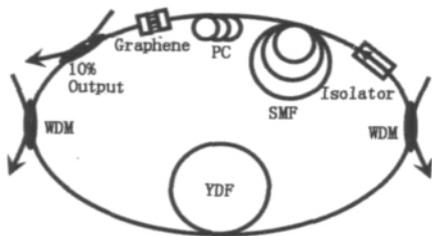


图5 双向泵浦掺镜光纤环形腔锁模激光器示意图

他们研究发现,石墨烯的饱和吸收特性与光的

偏振态无关,可以产生矢量孤子。将输出脉冲通过一个偏振分束镜(PBS),观察到两个偏振正交孤子的幅值是周期性变化,说明了石墨烯锁模孤子是矢量孤子,如图 6 所示,这与 NPR 锁模得到的标量孤子截然不同^[7]。

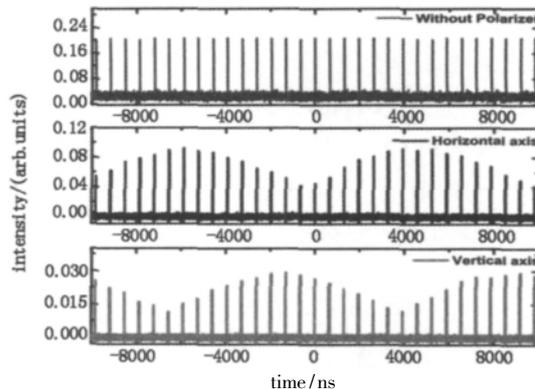


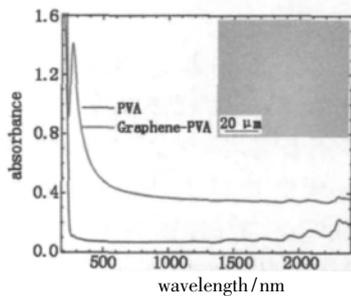
图6 矢量孤子幅值变化图

他们还实验对比发现,单层石墨烯在脉冲整形能力、脉冲稳定性、输出能量等方面都优于多层石墨烯和有缺陷的石墨烯。这说明高质量、大面积、少层数和低成本是石墨烯锁模器件的发展方向^[8]。

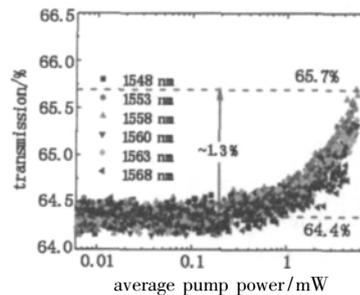
2.2 剑桥大学

剑桥大学 Z. Sun, T. Hasan 等人主要在压窄石墨烯锁模脉冲宽度方面做出了贡献。

他们利用液相剥离法,将石墨片和去离子水超声振荡得到石墨烯溶液,又与 PVA 溶液混合,真空烘干得到 50 μm 厚的复合材料。实验测量了复合材料的线性吸收谱和非线性吸收曲线,如图 7 所示。证



(a) 线性吸收谱



(b) 非线性吸收曲线

图7 石墨烯-PVA膜

实石墨烯的吸收特性与波长无关。

将薄膜加载进有 0.8 m 掺铒增益光纤的环形腔,调节泵浦功率和偏振控制器,得到了 19.9 MHz 的稳定脉冲序列。中心波长约 1559 nm,谱宽为 5.24 nm,自相关曲线宽度 713 fs,对应脉冲宽度 464 fs^[9]。

之后他们采用色散管理技术,得到了更窄的锁模脉冲,与理论预测相符。环形腔中使用 1.25 m 高掺杂掺铒光纤($\beta_2 = 48 \text{ ps}^2/\text{km}$),总腔长约 7.6 m,腔内总色散值为 -0.052 ps^2 ,是典型的色散管理腔,如图 8 所示。获得了约 174 fs 的超短脉冲^[10]。

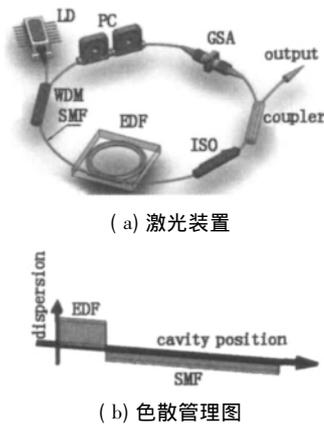


图 8 色散管理腔激光器示意图

2.3 韩国科技大学

韩国科技大学 Yong-Won Song 等人在石墨烯锁模器件的制作方面做了比较全面的研究。主要包括:①机械剥离法;②渐变场法;③光学沉积法;④中空光纤法等。

他们用胶带反复剥离高序热解石墨(HOPG)至一定厚度,再用清洁过的光纤套管头小心按压石墨薄层,会有少层石墨烯留在纤心区域。将这样的锁模器件接入环形掺铒光纤腔,得到了重复频率 10.9 MHz,脉宽 3.2 ps,谱宽 0.8 nm 的脉冲序列^[11]。实验证实尽管机械剥离法得到的少层石墨烯在大小和厚度上都不能精确控制,但依然表现出很好的非线性吸收特性。

他们还利用石墨烯与传输光的渐变场相互作用,在高频区实现了脉冲整形。将石墨烯溶液喷洒在经“半边抛光”处理的 6 mm 长的 D 形光纤上,快速烘干后,均匀的石墨烯膜在抛光平面上形成,封装起来防止可能的破坏是必要的,如图 9 所示。试验中获得了输出高达 7.25 nJ 的但脉冲能量,重复频率 6.99 MHz^[12]。与光的渐变场作用,被认为是一条防止超能量脉冲损坏石墨烯内部结构的有效途径。

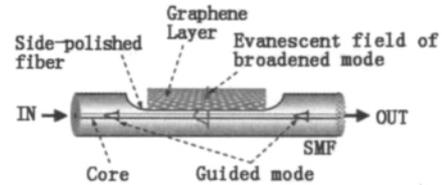


图 9 渐变场作用锁模激光器示意图

为了减小在光诱导沉积方法中对石墨烯的损害,保证其完整的二维晶体结构,他们将石墨烯和 PVAc 共同溶解于 DMF 溶剂中,PVAc 作为缓冲媒介,可以起到防止石墨烯卷曲损伤的作用。实验得到了中心波长 1572.6 nm,重复频率 91.5 MHz 的脉冲序列^[13]。

他们还将石墨烯与 PVAc 的混合溶液注入到一段 59 mm 的中空光纤中,烘干制成了新型渐变场作用的锁模器,适用于高能激光的锁模。组合进掺铒光纤环形腔激光器中,测得输出平均功率可达 80 mW,此时对应脉宽 5.9 nm,脉宽 510 fs^[14]。

2.4 东京大学

东京大学 Shinji Yamashita 等人实现了石墨烯的线形腔锁模,还对机械剥离和光诱导沉积方法做了改进。

他们将石墨烯溶液喷砂到电介质镜上,置入 F-P 线形腔内,如图 10 所示。得到了中心波长 1562 nm、谱宽 3.2 nm、脉宽 880 fs 的输出。因为该装置的单程腔长仅有十几个毫米,所以得到的脉冲重复频率高达 10 GHz。高速脉冲序列经过色散变换光纤(DSF)后,得到了模式间隔 0.08 nm 的多波长输出^[15]。而这两类激光都具有很高的实际利用价值,实验说明石墨烯具有快速恢复时间,可用于高速脉冲序列的产生。

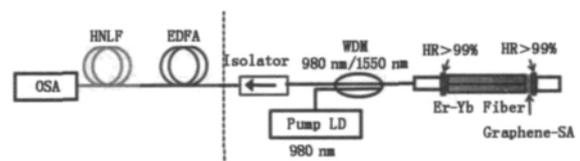


图 10 石墨烯线形腔锁模激光器装置示意图

无论机械剥离挤压,还是光诱导沉积石墨烯到光纤头上,石墨烯厚度都是随机的、不可控制的。他们利用一种简单的方法解决了这一问题:信号光被注入光纤,反射光通过环形器被功率计实时监测,加载石墨烯的多少可以由反射光的大小来估算,并根据此方法得到了不同厚度的石墨烯层,成功用于激光锁模^[16-17]。

2.5 其他

波兰弗罗茨瓦夫理工大学 Grzegorz Sobon 等人通过机械剥离法得到石墨烯,搭建了石墨烯锁模掺铒光纤环形腔激光器。随着泵浦功率的增加,得到了高阶谐波锁模脉冲,最高可达 2.22 GHz^[18]。

澳大利亚 B. V. Cunning 等人将纯石墨烯膜加载到金镜上,制成反射式的可饱和吸收镜。由于没有聚合物的加入,使得不可饱和的插入损耗降低,可用于低增益的光纤激光器锁模。实验中得到了 200 fs 以下的超短脉冲^[19]。

3 国内研究进展

3.1 北京工业大学

北京工业大学刘江等人对石墨烯锁模光纤激光器方面做了较多的工作,主要包括:①新颖的石墨烯锁模器件的使用;②高能量脉冲的实现;③利用氧化石墨烯实现了光纤激光器的锁模。

碳化硅(SiC)衬底外延法是一种石墨烯的制备方法。在超高真空条件下加热 6H-SiC 晶体,晶体表面出现碳化现象,这样就形成了附着在晶体表面的石墨烯膜。由于 SiC 晶体本身是通光的,而且操作性好,所以附有石墨烯的晶体可以当做一种新颖的可饱和输出镜来使用,如图 11 所示。产生了稳定的重复频率为 1.05 MHz 的脉冲串^[20]。

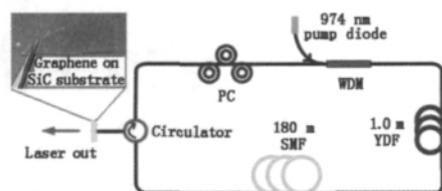


图 11 SiC 衬底石墨烯掺铒光纤激光器装置示意图

他们还将石墨烯膜附着在宽带反射镜上,制成了反射式可饱和吸收镜,又利用环形器将反射镜接入光纤环形腔,实验中单向泵浦掺铒光纤,在重复频率为 1.04 MHz 情况下,得到最大输出功率 170 mW,对应单脉冲能量高达 163 nJ^[21]。他们还研究证实了氧化石墨烯具有可饱和吸收特性。将氧化石墨烯用于掺铒光纤激光器,首次得到了中心波长 2007 nm 的锁模脉冲序列,将石墨烯应用波长拓展到 2 μm 波段^[22]。

3.2 香港理工大学

香港理工大学 He Xiaoying 等人主要研究了氧化石墨烯溶液与特殊光纤结合制成的锁模器件,并用于光纤激光器的锁模运行。

氧化石墨烯具有良好的溶解性,可以将其水溶

液注入中空光子晶体光纤,再与增益光纤、色散补偿光纤等组合成全光纤结构的锁模激光器,如图 12 所示。腔内总色散约为 0.53 ps²,是典型的色散管理腔。实验获得中心波长 1561.2 nm,谱宽 0.11 nm 的脉冲序列,脉宽较大,约为 4.85 ns^[23]。

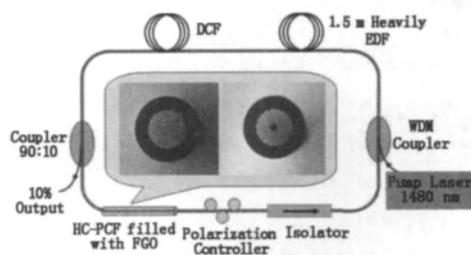


图 12 氧化石墨烯注入中空光子晶体光纤锁模示意图
(插入部分为注入前、后的横截面放大对比图)

之后,他们制作了另外一种新颖的渐变场锁模器件。通过高温烘干将还原氧化石墨烯溶液沉积在微光纤的表面。渐变场的强烈耦合是微光纤的一大特点,接入环形腔后,饱和吸收效应将通过还原氧化石墨烯与渐变场的相互作用表现出来。实验中实现了脉宽 18 ps,重复频率 7.47 MHz 的脉冲序列^[24]。

3.4 台湾中山大学

台湾中山大学 Huang Shr-Hau 等人创造性地研究了石墨纳米粉末(平均线度约 600 nm)的相关特性,发现石墨纳米粉末与石墨烯类似,也具有平坦的线性吸收谱和可饱和吸收特性。锁模器件的制作方式是在光纤头上蘸取 PVA 溶液以帮助吸附石墨纳米粉末。用于掺铒光纤激光器,得到的脉冲特征参数也很理想,中心波长为 1561.12 nm,谱宽 1.62 nm,脉宽 1.58 ps,时间带宽积 0.32,接近变换极限^[25]。

他们实验对比研究了聚合物载膜方法中,石墨烯的浓度对锁模脉冲的影响,发现在特定腔内条件下,1.65 wt% 和 3.25 wt% 两种石墨烯浓度得到的锁模脉各方面特性几乎相同^[26]。类似的,实验对比了 CVD 薄膜法中,石墨烯层数对锁模脉冲的影响,实验发现少层(7 层、11 层、14 层)石墨烯膜相较于多层(21 层)石墨烯膜更难实现稳定的孤子锁模^[27]。

4 结束语

电子理论和大量实验都表明石墨烯材料具有宽带可饱和吸收谱、超快恢复时间、损坏阈值高、插入损耗小等优点,在超短脉冲光纤激光器领域将有广泛的应用。然而从以上综述可以看出,该领域的研究还处在探索阶段,存在着不少急需改进的地方,如高质量石墨烯的制备、性能可控锁模器件的制作,光

纤腔的优化设计等。随着石墨烯制备工艺、封装技术的进步,产品级的石墨烯锁模器件很有可能出现,并取代半导体类锁模器件,用于产生各种性能要求的脉冲激光。

参考文献:

- [1] Shu Qiang, Shu Yongchun, Liu Rubin, et al. Development of semiconductor saturable absorption mirror used for high average output power ultrashort pulses laser [J]. *Laser & Infrared* 2007, 37(3): 197-210. (in Chinese)
舒强, 舒永春, 刘如彬, 等. 半导体可饱和吸收镜实现超短高功率脉冲激光研究进展 [J]. *激光与红外*, 2007, 37(3): 197-210.
- [2] Yu Yongqin, Zhang Jiarong, Du Chenlin, et al. Research and progress of carbon nanotubes passively mode-locked fiber laser [J]. *Laser & Infrared*, 2011, 41(9): 953-960. (in Chinese)
于永芹, 郑家容, 杜晨林, 等. 碳纳米管被动锁模光纤激光器的研究进展 [J]. *激光与红外*, 2011, 41(9): 953-960.
- [3] Qiaoliang Bao, Han Zhang, Yu Wang, et al. Atomic-layer graphene as a saturable absorber for ultrafast pulsed lasers [J]. *Advanced Functional Materials*, 2009, 19(19): 3077-3083.
- [4] Han Zhang, Qiaoliang Bao, Dingyuan Tang, et al. Large energy soliton erbium-doped fiber laser with a graphene-polymer composite mode locker [J]. *Applied Physics Letters* 2009, 95(14): 141103.
- [5] Han Zhan, Dingyuan Tang, Knize R J, et al. Graphene mode locked, wavelength-tunable, dissipative soliton fiber laser [J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 96(11): 111112.
- [6] Zhao L M, Tang D Y, Zhang H, et al. Atomic multi-layer graphene for dissipative soliton generation in ytterbium-doped fiber laser [C]. PGC 2010 Singapore.
- [7] Zhang Han, Tang Dingyuan, Zhao Luming, et al. Vector dissipative solitons in graphene mode locked fiber lasers [J]. *Optics Communications*, 2010, 283(17): 3334-3338.
- [8] Bao Qiaoliang, Zhang Han, Ni Zhenhua, et al. Monolayer graphene as a saturable absorber in a mode locked laser [J]. *Nano Research* 2011, 4(3): 297-307.
- [9] Sun Zhipei, Hasan Tawfique, Torrisi Felice, et al. Graphene mode-locked ultrafast laser [J]. *ACS Nano* 2010, 4(2): 803-810.
- [10] Popa D, Sun Z, Torrisi F, et al. Sub 200 fs pulse generation from a graphene mode-locked fiber laser [J]. *Applied Physics Letters* 2010, 97(20): 203106.
- [11] You Minchang, Hyungseok Kim, Lee Juhan, et al. Multi-layered graphene efficiently formed by mechanical exfoliation for nonlinear saturable absorbers in fiber mode-locked lasers [J]. *Applied Physics Letters* 2010, 97(21): 211102.
- [12] Song Yongwon, Jang Sungeon, Han Wonsuk, et al. Graphene mode-lockers for fiber lasers functioned with evanescent field interaction [J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 96(5): 051122.
- [13] Hyungseok Kim, Junhyun Cho, Sungeon Jang, et al. Deformation-immunized optical deposition of graphene for ultrafast pulsed lasers [J]. *Applied Physics Letters* 2011, 98(2): 021104.
- [14] Sun Youngchoi, Dae Kuncho, Song Yongwon. Graphene-filled hollow optical fiber saturable absorber for efficient soliton fiber laser mode-locking [J]. *Optics Express*, 2012, 20(5): 5652-5657.
- [15] Martinez A, Yamashita S. Fiber fabry-perot laser mode-locked by graphene for the generation of supercontinuum with 10 GHz mode spacing [C]. CLEO 2011, Baltimore, MD, USA.
- [16] Martinez A, Fuse K, Yamashita S. Mechanical exfoliation of graphene for the passive mode-locking of fiber lasers [J]. *Applied Physics Letters* 2011, 99(12): 121107.
- [17] Martinez A, Fuse K, Bo Xu, et al. Optical deposition of graphene and carbon nanotubes in a fiber ferrule for passive modelocked lasing [J]. *Optics Express*, 2010, 18(22): 23054-61.
- [18] Sobon G, Sotor J, Abranski KM. Passive harmonic mode-locking in Er-doped fiber laser based on graphene saturable absorber with repetition rates scalable to 2.22 GHz [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 100(16): 161109.
- [19] Cunning B V, Brown C L, Kielpinski D. Low-loss flake-graphene saturable absorber mirror for laser mode-locking at sub-200-fs pulse duration [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 99(26): 261109.
- [20] Liu Jiang, Wei Rusheng, Xu Jia, et al. Passively mode locked Yb doped fiber laser with graphene epitaxially grown on 6H-SiC substrates [J]. *Chinese Journal of Lasers* 2011, 38(8): 0802003. (in Chinese)
刘江, 魏汝省, 徐佳, 等. 基于 6H-SiC 衬底外延石墨烯的被动锁模掺镱光纤激光器 [J]. *中国激光*, 2011, 38(8): 0802003.
- [21] Liu Jiang, Wu Sida, Yang Quanhong, et al. 163 nJ Gra-

- phene mode-locked Yb-doped fiber laser [C]. CLEO: 2011 ,Baltimore ,MD ,USA.
- [22] Liu Jiang ,Wu Sida ,Xu Jia ,et al. [J]. Chinese Journal of Lasers 2012 ,39(3) :0310001. (in Chinese)
刘江 ,吴思达 ,徐佳 ,等. 基于氧化石墨烯锁模的 2 μm 掺铥超短脉冲光纤激光器 [J]. 中国激光 ,2012 ,39 (3) :0310001.
- [23] Liu Zhibo ,He Xiaoying ,Wang D N. Passively mode-locked fiber laser based on a hollow-core photonic crystal fiber filled with few-layered graphene oxide solution [J]. Optics Letters 2011 ,36(16) :3024 - 3026.
- [24] He Xiaoying ,Liu Zhibo ,Wang Dongning ,et al. Passively mode-locked fiber laser based on reduced graphene oxide on microfiber for ultra-wide-band doublet pulse generation [J]. Journal of Lightwave Technology ,2012 ,30 (7) : 984 - 989.
- [25] Lin Yunghsiang ,Lin Gongru. Medium-gain erbium doped fiber amplifier ring laser passively mode locked by graphite nanopowder adhered thin PVA film [C]. SPIE ,2012 , Brussels ,Belgium.
- [26] Huang Shrhau ,Huang Piling ,Hsieh Bizen ,et al. Concentration effect of dispersed graphene based saturable absorber on stabilizing and shortening mode-locked pulse [C]. WOCC. 2012 ,Taiwan.
- [27] Huang Piling ,Lin Shauching ,Yeh Chaoyung ,et al. Stable mode-locked fiber laser based on CVD fabricated graphene saturable absorber [J]. Optics Express ,2012 ,20 (3) :2460 - 2465.