

中红外锁模氟化物光纤激光器研究进展

罗鸿禹, 李剑峰*

电子科技大学电子薄膜与集成器件国家重点实验室, 四川 成都 610054

摘要 中红外超短脉冲激光是国际研究热点,它在激光微创治疗、聚合物精细加工、高次谐波产生、强场激光物理、超快分子成像等领域具有重要的应用前景,而锁模是产生超短脉冲的重要技术手段。本文围绕氟化物光纤激光器,从稀土离子中红外激光激射过程出发,对该波段目前常用的三种锁模方式(包括材料可饱和吸收、非线性偏振旋转、频移反馈)的工作机理、发展现状以及存在问题进行了介绍、分析与总结,并对中红外锁模光纤激光器的发展趋势进行了展望。

关键词 光纤光学; 光纤激光器; 中红外激光; 氟化物光纤; 超短脉冲; 锁模

中图分类号 TN248

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202249.0101003

1 引言

中红外波段(2~20 μm)是一个特殊的波长区间,它不仅包含了两个大气低损传输窗口(3~5 μm 和 8~13 μm),同时还覆盖了众多重要分子和原子的本征吸收峰,而飞秒(fs)、皮秒(ps)尺度的超短脉冲拥有超快的时间响应、超高的峰值功率及宽光谱特性,因此工作在该波长区间的超短脉冲在激光微创治疗、聚合物精细加工、高次谐波产生、强场激光物理、超快分子成像等领域都具有极大的应用前景^[1-5]。目前,产生中红外超短脉冲的途径大致有以下两种:1)非线性波长转化,借助不同非线性过程(如光参量振荡、光参量放大、四波混频、孤子自频移等)将其他波长的超短脉冲转化到中红外波段^[6-9];2)模式锁定(简称锁模),对不同中红外激光振荡器(如固体激光器、光纤激光器)中各个纵模进行相位锁定,通过相干迭加的方式直接产生超短脉冲。虽然两种技术途径各具优势,但随着半导体激光泵浦的激光器在小型化和集成化进程上的快速发展,锁模激光器(尤其是锁模光纤激光器)逐渐成为产生超短脉冲的一种主流技术手段。然而,相较于成熟的

近红外波段,由于中红外光纤拉制工艺及器件制备技术还不够成熟,中红外锁模光纤激光器的整体发展水平滞后较大。针对该现状,亟须对该方向目前的发展情况以及所遇到的问题进行系统梳理和分析,帮助相关人员更好地把控领域发展动态明确未来努力方向。

本文从稀土离子掺杂氟化物光纤出发,首先介绍了基于不同跃迁过程的中红外激光激射方法和现状,在此基础上对目前该波段三种最为常用的锁模方式的工作原理及发展现状进行了介绍、总结与分析,最后对中红外锁模光纤激光器的发展趋势进行了展望。

2 稀土离子掺杂氟化物光纤中红外激光产生

稀土离子掺杂光纤激光器因具有高增益、宽带宽、高非线性、易于小型化集成化等优势逐渐成为产生锁模脉冲的理想平台之一。目前,基于不同稀土离子(如 Yb^{3+} 、 Er^{3+} 、 Tm^{3+} 、 Ho^{3+})掺杂的石英光纤激光器已经作为激光激射平台被广泛应用于 1~2 μm 近红外波段锁模脉冲的产生^[10-13]。在 1 μm

收稿日期: 2021-09-22; 修回日期: 2021-10-22; 录用日期: 2021-10-28

基金项目: 国家自然科学基金(U20A20210, 62005040, 61421002)、中央高校基本科研业务费(ZYGX2019Z012, ZYGX2020KYQD003)、四川省科技支撑项目(2021YJ0368)

通信作者: *lijianfeng@uestc.edu.cn

波段,锁模石英掺 Yb³⁺ 光纤激光器的性能参数甚至已经达到了目前商用 fs 钛宝石激光器的水平^[14]。然而,传统石英光纤声子能量高达 1100 cm⁻¹,不但难以支持 >2.2 μm 波长激光低损传输,而且较高的声子能量还会加速长波跃迁猝灭,抑制激光激射。值得强调的是,各个领域对波段的划分存在着细微差异,本文中,将传统石英光纤激光器难以实现激光激射的 >2.5 μm 波长区域称为中红外波段。在中红外波段,目前较为常用的光纤基质材料主要包含氟化物、硫化物以及碲化物几种,其中,氟化物玻璃[尤其是 53ZrF₄-20BaF₂-4LaF₃-3AlF₃-20NaF(摩尔分数)组分(ZBLAN)]因具有相对较低的声子能量(典型值为 500~600 cm⁻¹)、优良的稀土离子掺杂能力(摩尔百分数高达 10%)、较高的机械强度及可靠的化学稳定性,成为中红外波段最为常用的稀土

离子掺杂基质材料,但由于拉制工艺的巨大差异,该类光纤还未达到与石英光纤同等的成熟度。虽然近几年以吉林大学、哈尔滨工程大学为代表的国内研究机构在稀土离子掺杂氟化物光纤拉制以及激光产生方面取得了较大的研究进展^[15-19],但目前国际上仅日本 Fiberlabs 公司和法国 Le Verre Fluoré 公司能够提供商用的稀土离子掺杂氟化物光纤,我国在该类光纤产业化方面还有很长的路要走。如图 1(a)所示是三种典型的稀土离子(即 Er³⁺、Ho³⁺ 和 Dy³⁺) 在氟化物玻璃中的中红外辐射带^[19-22],可以看到,上述三种稀土离子几乎可以覆盖 2.5~4.5 μm 整个范围,对应的能级跃迁过程以及泵浦激发方式如图 1(b)所示^[19-29]。表 1 列举了基于上述三种离子掺杂的连续氟化物光纤激光器典型结果。

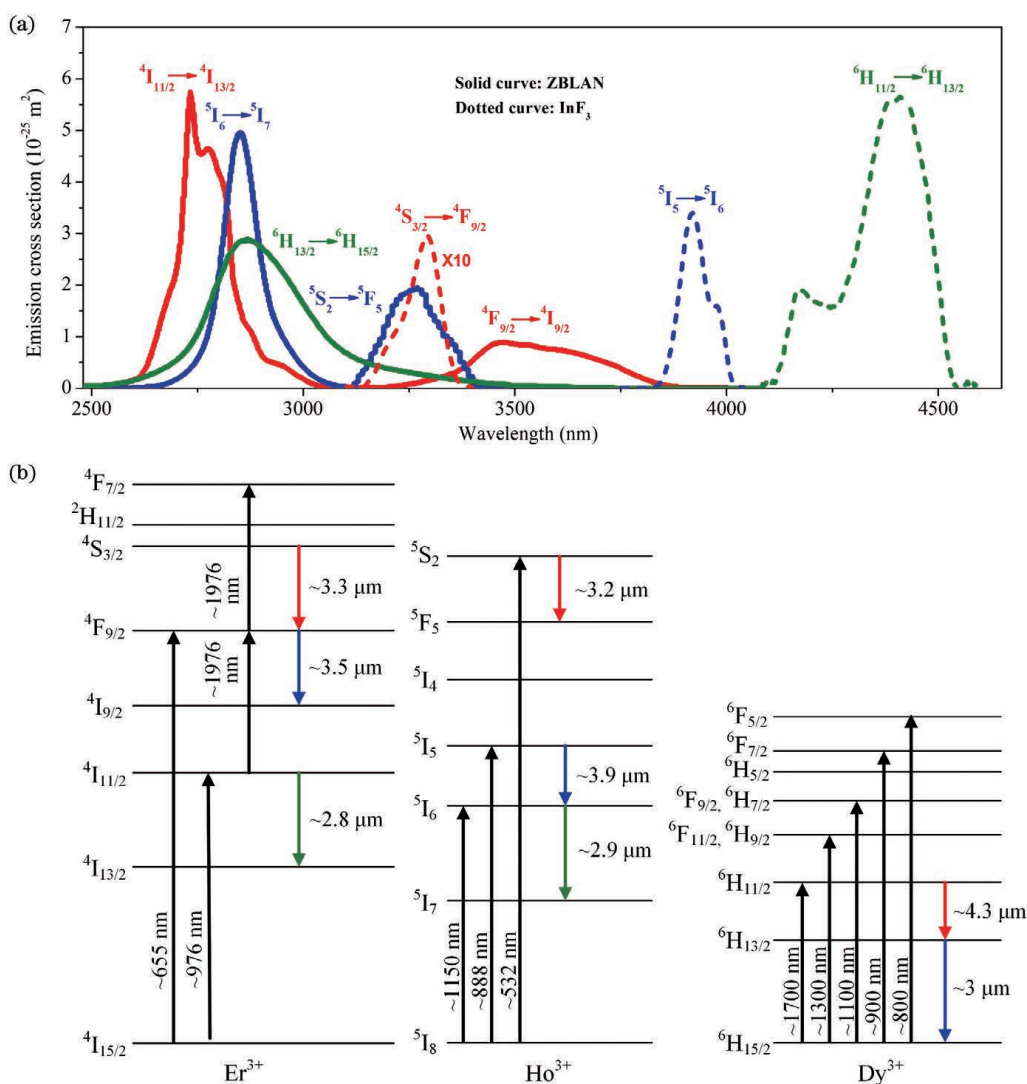


图 1 掺 Er³⁺、Ho³⁺ 和 Dy³⁺ 氟化物玻璃。(a) 中红外发射谱^[19-22]; (b) 对应的能级图、跃迁过程及泵浦方式^[19-29]
 Fig. 1 Er³⁺-, Ho³⁺-, and Dy³⁺-doped fluoride glasses. (a) Mid-infrared emission spectra^[19-22]; (b) corresponding energy level diagrams, transitions, and pump methods^[19-29]

表 1 典型的连续波(CW)中红外掺 Er^{3+} 、 Ho^{3+} 和 Dy^{3+} 氟化物光纤激光器性能参数Table 1 Performance parameters of typical continuous wave (CW) mid-infrared Er^{3+} , Ho^{3+} , and Dy^{3+} -doped fluoride fiber lasers

Dopants	Host material	λ_p /nm	P /W	λ_L /nm	Reference
Er^{3+}	ZBLAN	980	41.20	2824	[30]
Er^{3+}	ZBLAN	975	11.00	2710–2880	[31]
Er^{3+}	ZBLAN	976+1976	5.60	3552	[32]
Er^{3+}	ZBLAN	980+1973	1.50	3330–3780	[33]
$\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$	ZBLAN	1150	7.20	2825–2975	[34]
Ho^{3+}	ZBLAN	532	0.11	3220	[35]
Ho^{3+}	InF_3	888	0.20	3917–3924	[21]
Dy^{3+}	ZBLAN	2830	10.10	3239	[36]
Dy^{3+}	ZBLAN	1700	0.17	2807–3380	[26]

(Note: λ_p represents pump wavelength, P represents power, λ_L represents laser wavelength)

从图 1 表 1 中可以看到,连续运转的 $2.8 \mu\text{m}$ 掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器输出功率已经超过 40 W ^[30],代表了目前中红外氟化物光纤激光器的最高功率水平,这一方面得益于成熟的 976 nm 半导体激光泵浦技术,另一方面是因为 Er^{3+} 中高效的能量传递上转化过程(ETU)促使了该四能级系统粒子快速循环从而保证了激光器高效运转^[37],这为中红外锁模脉冲的产生提供了可靠的平台。掺 Dy^{3+} ZBLAN 光纤在 $3 \mu\text{m}$ 附近具有超宽的辐射带,已经能够实现调谐带宽近 600 nm (所有波长连续光纤激光器最宽波长调谐范围)的连续激光输出^[26],这使其成为实现数十飞秒超短脉冲的理想介质选择,同时准三能级结构决定的同带泵浦方式使得该系统在转化效率方面也具有先天的优势^[36]。掺 Ho^{3+} 氟化物光纤虽然受泵浦波长和转化效率制约,输出功率相对较低,但却能够实现目前稀土离子掺杂氟化物光纤直接激励的最长波长^[21],在长波长超短脉冲产生方面极具潜力。

3 中红外锁模氟化物光纤激光器的研究进展

近年来,随着红外锁模器件及技术的不断成熟,加上中红外超快应用对超短脉冲需求的不断扩大,中红外锁模氟化物光纤激光器经历了前所未有的快速发展,国际上也涌现出了大量的报道。相比近红外波段较为丰富的锁模技术,中红外波段目前所采用的方法还较少,大体可以分为三类:1)材料可饱和吸收(MSA)锁模技术;2)非线性偏振旋转(NPR)锁

模技术;3)频移反馈(FSF)锁模技术。虽然主动锁模(AML)^[38]、非线性反射镜(NLM)^[39]以及自锁模(SML)^[40]技术也已经被成功用于中红外波段,但相关报道并不多,且性能还无法和前三者相比。下面将针对上述三种主要的锁模方法,就工作原理、发展现状以及存在的问题进行介绍与分析。

3.1 MSA 锁模技术

MSA 锁模技术是采用具有光学非线性吸收特性的材料作为锁模器件[也称为可饱和吸收体(SA)]来实现锁模的方法。具体而言,所采用的光学材料拥有强度相关的透射率,对弱光具有较强的吸收,而对强光则表现出较高的透射率,因此当脉冲在谐振腔内不断振荡时,会经历持续的时域窄化,最终达到平衡状态,产生稳定的锁模脉冲,其工作原理如图 2 所示。该种方式结构较为简单,仅需在腔内

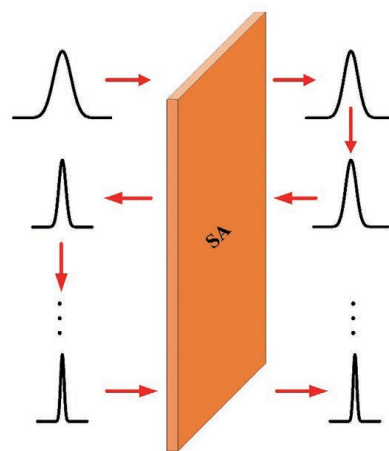


图 2 MSA 效应的工作原理

Fig. 2 Working mechanism of MSA effect

加入 SA, 因此已经被广泛用于各种锁模激光器中, 而 SA 作为系统的核心器件, 其性能参数 (如饱和光强、非饱和损耗、调制深度、恢复时间等) 对最终锁模脉冲的形态及稳定性起着关键作用。

半导体可饱和吸收镜 (SESAM) 作为目前最为成熟的锁模器件, 早在 20 世纪 90 年代, 就已经被用于钛宝石激光器中实现了锁模脉冲输出^[41]。然而, 受限于所采用半导体材料的带隙, 该器件始终难以被应用到中红外波段。1996 年, 德国不伦瑞克工业大学 Frerichs 等^[42]利用 InAs 半导体外延层作为 SA, 在掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器中率先观察到了 $2.7 \mu\text{m}$ 锁模分量, 但受到 SA 性能的限制, 激光器只能在不稳定的调 Q 锁模状态下工作。直到 2012 年, 德国 BATOP GmbH 公司利用 InAs 半导体材料研制了国际上第一款商用的型号为 SAM-3000-33-10 ps 的中红外 SESAM, 其饱和通量为 $70 \mu\text{J}/\text{cm}^2$, 调制深度和非饱和损耗分别为 18% 和 15%, 损伤阈值高达 $1 \text{ mJ}/\text{cm}^2$, 这也为中红外锁模脉冲的实现提供了契机。同年, 澳大利亚悉尼大学 Li 等^[43]将该器件引入到线性腔结构的 $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ 共掺 ZBLAN 光纤激光器中, 率先在 $2.87 \mu\text{m}$ 中红外波段获得了重复频率为 27.1 MHz, 平均功率为 132 mW, 脉冲宽

度为 24 ps 的锁模脉冲输出, 这也标志着第一台中红外锁模光纤激光器的诞生, 如图 3 所示是该报道所采用的实验装置及相应输出特性。由于腔内除增益光纤和锁模器件外并未采取额外色散管理措施, 脉冲时间带宽积 (TBP) 高达 3.5, 这意味着其中含有大量啁啾, 同时 50 dB 的信噪比 (SNR) 也低于稳定锁模光纤激光器的平均水平, 因此, 该锁模激光器在性能上还有巨大提升空间。几乎在同一时间, 美国亚利桑那大学 Wei 等^[44]借助 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体在 $3 \mu\text{m}$ 波段的强吸收特性, 将其引入到 $2.78 \mu\text{m}$ 掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器中同样观察到了重复频率为 50 MHz (对应周期为 20 ns), 时域宽度在 ps 量级的锁模现象。但值得注意的是, 室温条件下 $\text{Fe}^{2+}:\text{ZnSe}$ 晶体恢复时间长达 $370 \pm 25 \text{ ns}$ ^[45], 几乎为获得锁模脉冲周期的十余倍, 即便作为慢 SA 也很难通过锁模方式实现 ps 脉冲输出。虽然该问题并未在文中进行讨论, 但可能原因是当激光作用于该晶体上时, 晶体内部会伴随着一定的热弛豫过程, 这导致晶体有效作用区域温度远高于室温从而使其恢复时间大幅降低^[45], 最终满足 ps 锁模脉冲产生的条件, 而其具体原因还有待进一步研究。

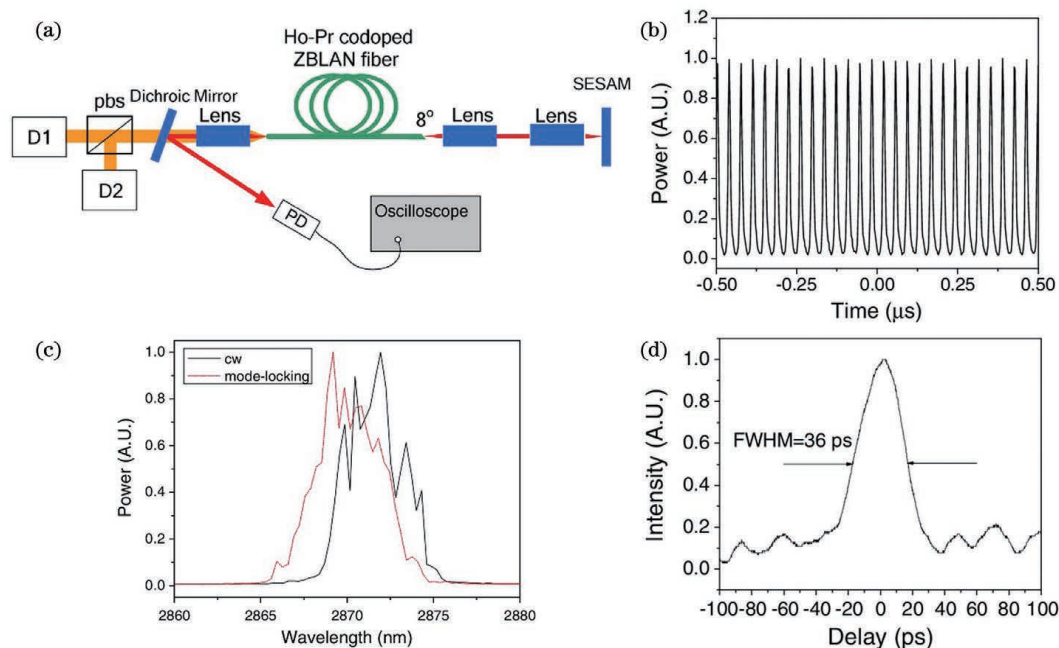


图 3 SESAM 锁模的 $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ 共掺 ZBLAN 光纤激光器^[43]。(a) 实验装置; (b) 时域脉冲序列; (c) 连续及锁模状态光谱; (d) 自相关轨迹

Fig. 3 SESAM mode-locked $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ codoped ZBLAN fiber laser^[43]. (a) Experimental setup; (b) time domain pulse sequence; (c) optical spectra in the CW and mode-locking regimes; (d) autocorrelation trace

后来伴随着材料科学的快速发展, 越来越多的新型纳米材料被成功制备, 其中, 以石墨烯、拓扑绝缘

体、黑磷、碳纳米管、碳化钛等为代表的低维材料因具备超快的宽带可饱和吸收特性, 特别适用于中红外

MSA 锁模脉冲产生。表 2 列举了近十年来公开报道的 MSA 锁模中红外氟化物光纤激光器研究结果。

表 2 MSA 锁模的中红外氟化物光纤激光器主要进展及性能参数

Table 2 Progress and performance parameters of MSA mode-locked mid-infrared fluoride fiber lasers

Dopants	SA	λ /nm	τ /ps	P_{ave} /mW	P_{peak} /W	E /nJ	Time	Reference
Ho ³⁺ /Pr ³⁺	SESAM	2872.0	24	132.0	206	4.9	2012-09	[43]
Er ³⁺	Fe ²⁺ :ZnSe	2783.0	19 (estimated)	51.4	—	0.93	2012-09	[45]
Er ³⁺	SESAM	2784.0	5 (estimated)	142.0	—	—	2014-03	[46]
Ho ³⁺ /Pr ³⁺	InAs	2859.5	6	69.2	465	—	2014-04	[47]
Er ³⁺	Graphene	—	—	—	—	—	2014-06	[48]
Er ³⁺	SESAM	2797.0	60 (estimated)	440.0	—	—	2014-06	[49]
Ho ³⁺ /Pr ³⁺	Bi ₂ Te ₃	2830.0	6	90.0	1400	8.6	2015-05	[50]
Er ³⁺	SESAM	2780.0	25	1050.0	1860	—	2015-11	[51]
Er ³⁺	Black phosphorus	2783.0	42	613.0	610	25.5	2016-01	[52]
Er ³⁺	Graphene	2784.5	42	18.0	17	0.7	2016-01	[53]
Ho ³⁺	Black phosphorus	2866.7	8.6	87.8	—	6.28	2016-07	[54]
Ho ³⁺ /Pr ³⁺	Cd ₃ As ₂	2860.0	6.3	—	—	—	2017-01	[55]
Ho ³⁺ /Pr ³⁺	SESAM	2842.0 2876.0	22	127.7	—	—	2017-08	[56]
Er ³⁺	SESAM	2710.0 2820.0	6.4	203.0	1100	7.02	2017-11	[57]
Er ³⁺	Black phosphorus	3489.0	—	40.0	—	—	2018-04	[58]
Er ³⁺	Black phosphorus	2771.1	—	6.2.0	—	—	2018-11	[59]
Ho ³⁺ /Pr ³⁺	Carbon nanotube	2865.2	—	71.8	—	—	2019-02	[60]
Ho ³⁺ /Pr ³⁺	Carbon nanotube	2836.0 2906.0	5.3 (estimated)	126.6	—	—	2019-06	[61]
Er ³⁺	SESAM	2791.0	15	150.0	—	—	2019-06	[62]
Er ³⁺	WSe ₂	2790.0	21	360.0	—	8.4	2019-12	[63]
Er ³⁺	PtSe ₂	2796.0	—	223.0	—	—	2019-12	[64]
Ho ³⁺ /Pr ³⁺	Gold nanowires	2865.0	12	98.0	—	—	2021-04	[65]
Er ³⁺	Ti ₃ C ₂ T _x	2796.0	11.4 (estimated)	603.0	—	—	2021-06	[66]
Er ³⁺	SESAM	2717.0 2827.0	44	446.0	—	—	2021-09	[67]

(Note: λ represents wavelength, τ represents pulse width, P_{ave} represents average power, P_{peak} represents peak power, E represents energy)

从表 2 中可以看到,大部分报道的工作波长主要集中在 2.7~2.9 μm 之间,这得益于该波段连续掺 Er³⁺ 和掺 Ho³⁺ 氟化物光纤激光器的快速发展。近年来,随着光纤拉制工艺和泵浦方式的突破和创新,氟化物光纤激光器的工作波长不断向长波方向拓展^[21,32,36],这也同时推动了中红外长波锁模光纤激光器的发展。根据工作重心的不同,可将上述报道分为两类,一类主要围绕商用半导体材料及器件(如 InAs 及 SESAM),通过谐振腔结构及参数的优

化来实现锁模脉冲性能提升(如脉冲宽度、输出功率、工作波长、偏振态等),而另一类则围绕新型纳米材料,借助较为成熟的激光器结构及腔形,探索和挖掘新材料在中红外波段的锁模潜力及性能优势。

针对前者,2014 年,澳大利亚悉尼大学 Hu 等^[47]率先将商用 InAs 半导体材料作为 SA 引入到如图 4(a)所示的特殊设计的 Ho³⁺/Pr³⁺ 共掺 ZBLAN 光纤环形腔中,借助环形腔结构在寄生反馈和空间烧孔抑制方面的先天优势,获得了易于自

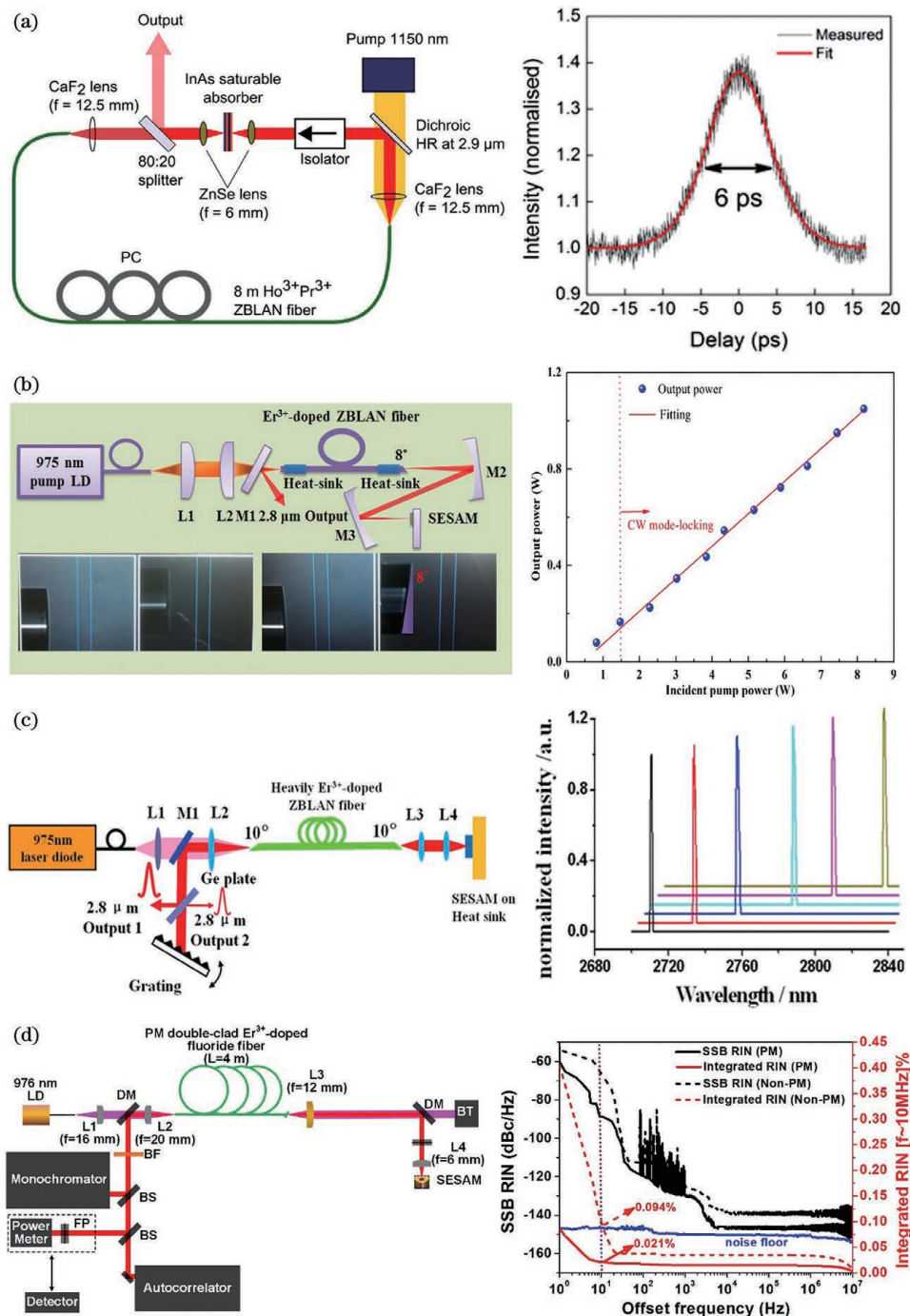


图 4 商用半导体材料或器件锁模的中红外氟化物光纤激光器。(a) InAs 锁模的 $2.86 \mu\text{m}$ $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ 共掺 ZBLAN 光纤环形振荡器装置示意图及脉冲自相关轨迹^[47]；(b) SESAM 锁模的 $2.78 \mu\text{m}$ 高功率掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器装置示意图及输出功率演化^[51]；(c) SESAM 锁模的约 $2.8 \mu\text{m}$ 可调谐掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器装置示意图及光谱^[57]；(d) SESAM 锁模的约 $2.8 \mu\text{m}$ 高稳定保偏掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器装置示意图及噪声特性^[67]

Fig. 4 Commercial semiconductor materials or components mode-locked mid-infrared fluoride fiber lasers. (a) Experimental setup of the InAs mode-locked $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ co-doped ZBLAN fiber ring oscillator at $2.86 \mu\text{m}$ and the autocorrelation trace^[47]；(b) experimental setup of the SESAM mode-locked high-power Er^{3+} -doped ZBLAN fiber laser at $2.78 \mu\text{m}$ and the output power evolution^[51]；(c) experimental setup of the SESAM mode-locked tunable Er^{3+} -doped ZBLAN fiber laser around $2.8 \mu\text{m}$ and the optical spectra^[57]；(d) experimental setup of the SESAM mode-locked high-stability polarization-maintaining Er^{3+} -doped ZBLAN fiber laser around $2.8 \mu\text{m}$ and the noise characteristics^[67]

启动的 $2.86 \mu\text{m}$ 锁模脉冲输出,其 SNR 高达 73 dB,脉冲宽度为 6 ps,如图 4(a)所示,对应的 TBP 为 1.1,虽然脉冲中仍然存在一定量的啁啾,但相比之前的结果^[43]已有大幅下降,同时该脉冲也是目前中红外波段通过 MSA 技术获得的最窄实测脉宽水平;同年,加拿大拉瓦尔大学 Haboucha 等^[49]利用 SESAM 作为锁模器件,通过在掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤中直接刻写光纤光栅(FBG)(3 dB 带宽为 2 nm,反射率为 84%)作为输出耦合,在局部空间结构的线性腔中实现了 $2.8 \mu\text{m}$ SNR 超过 75 dB 的锁模脉冲输出,但是由于 FBG 的限宽作用,脉冲光谱带宽仅为 0.14 nm,对应的近转化极限脉冲宽度为 60 ps。最近,他们在上述结果基础上^[62],通过对输出耦合 FBG 反射率及带宽等参数进行优化,在 $2.79 \mu\text{m}$ 实现了实测脉宽为 15 ps 的近转化极限锁模脉冲输出,由此可见,仅仅通过对输出耦合参数进行设计便可实现锁模脉冲输出波长和脉宽的灵活调控,这为未来中红外锁模氟化物光纤激光器全光纤化设计提供了重要的实验参考。2015 年,湖南大学 Tang 等^[51]也开展了类似工作,为了获得更高的输出功率,他们直接将光纤输出端面进行垂直切割,利用 4% 的非涅耳反射作为输出耦合,最终在 $2.78 \mu\text{m}$ 实现了平均输出功率高达 1.05 W 的锁模脉冲输出,所采用的实验装置和功率输出特性如图 4(b)所示,对应的脉冲宽度和峰值功率分别为 1.86 kW 和 25 ps,该平均功率也是目前采用 MSA 技术甚至所有中红外锁模氟化物光纤激光器中直接获得的最高水平。基于这种结构,通过在谐振腔中加入平面闪耀光栅作为波长调谐器件,电子科技大学 Wei 等^[56]和中国科学院西安光学精密机械研究所 Shen 等^[57]分别在 $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ 共掺和掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤系统中实现了 $2.842 \sim 2.876 \mu\text{m}$ 和 $2.71 \sim 2.82 \mu\text{m}$ 波长可调谐的 ps 锁模脉冲输出,所采用实验装置和对应的光谱如图 4(c)所示。除了脉宽、功率及波长灵活性外,稳定性也是锁模激光器的重要指标,然而目前几乎所有中红外锁模氟化物光纤激光器均是基于非保偏的标准 ZBLAN 光纤搭建,这类光纤对外界振动和温度变化具有极强的敏感性,使得系统稳定性较差。为了克服该问题,最近,本文作者^[67]率先采用保偏掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤作为增益介质搭建了 SESAM 锁模激光器,并在 $2717 \sim 2827 \text{ nm}$ 波长区间获得了稳定的线偏振 ps 锁模脉冲输出,偏振消光比大于 23 dB,所采用的实验装置和噪声特性如图 4(d)所示,相比相同结构的非保偏系统,其环境

稳定性和噪声抑制能力均有显著提升。

根据 InAs 半导体材料带隙(约为 0.36 eV)可知,其最长工作波长接近 $3.5 \mu\text{m}$,这意味着该材料理论上可支持波长小于 $3.5 \mu\text{m}$ 的锁模脉冲产生。最近,深圳大学 Fang 等^[68]利用 SESAM 在双波长泵浦的掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器中实现了波长接近 $3.5 \mu\text{m}$ 的调 Q 脉冲输出,这也从侧面暗示了 SESAM 的波长有效性。然而在 $2.9 \sim 3.5 \mu\text{m}$ 范围内,目前还未有任何 SESAM 锁模的报道,因此基于该器件的长波锁模特性研究未来还有待开展。

针对后者,2014 年,Zhu 等^[48,53]通过将化学气沉积法制备的石墨烯转移到镀金反射镜上作为 SA,借助石墨烯宽带超快饱和吸收特性,率先在掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器中实现了 $2.784 \mu\text{m}$ 的锁模脉冲输出,脉冲宽度为 42 ps,然而由于石墨烯损伤阈值较低,锁模脉冲功率和能量仅分别为 19 mW 和 0.7 nJ。随后,各种新型纳米材料(如拓扑绝缘体^[50]、黑磷^[52,54,58]、砷化镓^[55]、碳纳米管^[60-61]、过渡金属硫化物^[63]、碳化钛^[66])也相继被用于掺 Er^{3+} 和掺 Ho^{3+} 氟化物光纤激光器中产生锁模,由于该类研究的重心主要集中在新材料锁模特性本身,因此大部分报道均具有相似的激光器结构,此处仅对几个具有代表性的结果进行介绍与分析。2017 年,南京大学 Zhu 等^[55]利用分子束外延法制备了高质量的三维半金属材料砷化镓,通过泵浦探测方法证实了其在 $1.6 \sim 6 \mu\text{m}$ 范围内的超快非线性响应特性,利用该材料作为 SA,在 $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ 共掺 ZBLAN 光纤激光器中实现了波长位于 $2.86 \mu\text{m}$,脉宽为 6.3 ps 的锁模脉冲。更为重要的是,研究表明通过在砷化镓中掺入 Cr^{3+} 可使材料恢复时间在数 ps 到百 fs 量级变化,而通过使用不同恢复时间的样品,可实现锁模和调 Q 状态间的切换。2018 年,上海交通大学 Qin 等^[58]将机械剥离法制备的多层黑磷材料沉积在垂直切割的光纤端面作为 SA,由于黑磷层数与其带隙呈负相关性,因此通过增加厚度可在一定程度上拓展其工作波长,借助黑磷材料的宽带可饱和吸收以及纳米材料易于集成的先天优势,率先研制了工作波长为 $2.77 \mu\text{m}$ 的全光纤锁模掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器,其输出 SNR 高达 66 dB,对应的实验装置和时域脉冲序列如图 5(a)所示,虽然系统输出功率较低(仅 6.2 mW),难以采用商用自相关仪对脉冲宽度进行表征,但该结果标志着第一台全光纤结构中红外锁模氟化物光纤激光器的诞生。同时,他们^[58]又将黑磷材料沉积在镀金

反射镜上引入到 970 nm 和 1973 nm 双波长泵浦的掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器中,率先在大于 $3 \mu\text{m}$ 的中红外波段实现了锁模脉冲输出,如图 5(b)所示是所采用装置示意图以及时域脉冲序列,其工作波长和 SNR 分别为 $3.49 \mu\text{m}$ 和 54 dB;最近,本文作者^[65]采用具有超高长径比的金纳米线作为 SA,借

助其超宽带可饱和吸收以及高非线性特性,率先在 $2.86 \mu\text{m}$ $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ 共掺 ZBLAN 光纤激光器中同时观察到了基频和谐波锁模脉冲,对应的脉冲宽度分别为 12 ps 和 19 ps,如图 5(c)所示,这揭示了金纳米线材料在高重复频率锁模脉冲产生方面的巨大潜力。

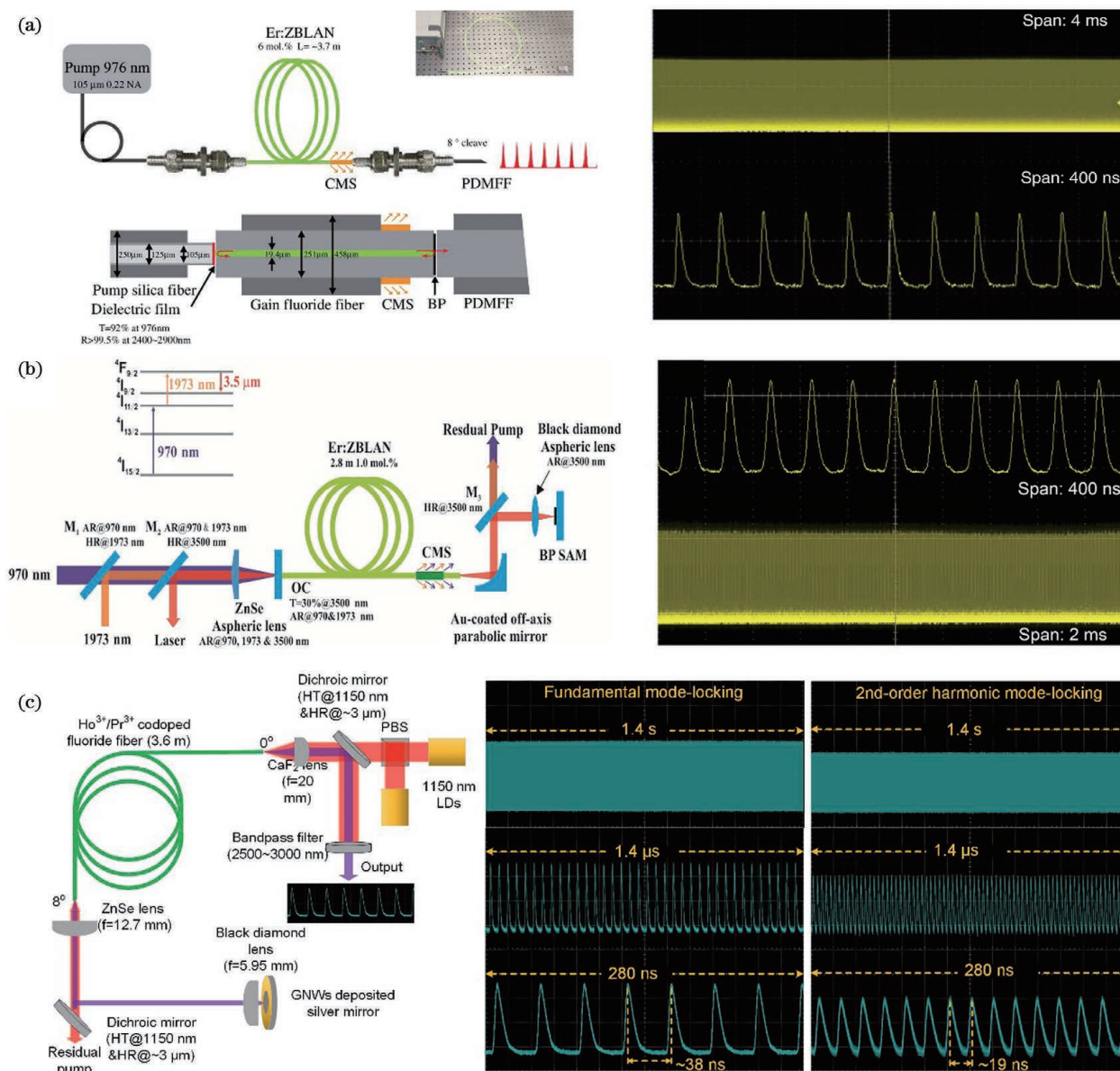


图 5 新型纳米材料锁模的 ZBLAN 光纤激光器装置示意图及脉冲序列。(a)黑磷锁模的 $2.77 \mu\text{m}$ 全光纤掺 Er^{3+} ^[59];

(b)黑磷锁模的 $3.49 \mu\text{m}$ 双波长泵浦掺 Er^{3+} ^[58];(c)金纳米线锁模的 $2.86 \mu\text{m}$ $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ 共掺^[65]

Fig. 5 Device schematics and pulse trains of novel nanomaterials mode-locked ZBLAN fiber laser. (a) Black phosphorus mode-locked $2.77 \mu\text{m}$ all-fiber Er^{3+} -doped^[59]; (b) black phosphorus mode-locked $3.49 \mu\text{m}$ dual-wavelength pumped Er^{3+} -doped^[58]; (c) gold nanowires mode-locked $2.86 \mu\text{m}$ $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ co-doped^[65]

总体来看,随着红外材料 SA 的技术革新,MSA 锁模的中红外氟化物光纤激光器在近几年经历了飞速发展。虽然现有商用半导体 InAs 材料及 SESAM 器件已经能够在 $2.7 \sim 2.9 \mu\text{m}$ 波段实现具

有较高稳定性和重复性的锁模脉冲输出,且其理论工作波长达到了 $3.5 \mu\text{m}$,但却难以支持更长波长的锁模脉冲产生。相比之下,新型纳米材料 SA 因具有超宽的可饱和吸收带,可有效解决现有商用器件

的长波受限问题,目前最长锁模波长达到了 $3.5\ \mu\text{m}$,然而该类 SA 发展还不够成熟,距离商用化在长时间稳定性、可靠性及可重复性上还有待大幅提升。除此之外,上述 MSA 锁模获得的脉冲宽度均位于 ps 量级,难以通过简单的腔形优化实现 fs 水平的窄化,主要的限制因素包含以下几点:1)相比近红外波段,现有中红外 SA(无论是商用器件还是新型的纳米材料)调制深度普遍较小,已报道的最大值仅为 24% ^[63],阻碍了脉冲窄化;2)目前 MSA 锁模的中红外氟化物光纤激光器工作波长主要位于 $2.7\sim 2.9\ \mu\text{m}$ 区间,正好处于较强的水汽吸收带,除个别外^[48,53],几乎所有报道均采用了局部空间结构,这意味腔内的光传输会受到水汽吸收的影响,而较窄的水汽低损传输窗口将大大压缩锁模脉冲带宽,从而限制时域窄化;3)近红外波段全光纤结构较为成熟且器件插损普遍较低,而中红外波段采用的局部空间结构会引入相对较大插入损耗,进一步限制了脉冲窄化。

3.2 NPR 锁模技术

与上一节中所介绍的 MSA 锁模技术不同,NPR 技术是借助光纤本身的非线性克尔效应对不同偏振方向的光施加不同非线性相移,从而实现可饱和吸收锁模,其运转机理如图 6 所示,该结构主要由起偏器、四分之一波片、双折射光纤、半波片及检偏器组成。当脉冲通过起偏器后其输出变为线偏振光,经过四分之一波片,该线偏振光将变为椭圆偏振光。当该椭圆偏振光进入双折射光纤后,其偏振状态将会随着传输发生旋转,由于脉冲不同位置所对应的强度不同,将累积不同的非线性相移,光强越强的位置所累积的非线性相移越多,当脉冲从光纤输出时,脉冲不同位置将对应不同的偏振状态。当该脉冲依次经过半波片和检偏器时,不同脉冲位置的光将经历不同的透射率(即形成强度相关的透射率),通过转动波片方向,使得强度最大的光以最高

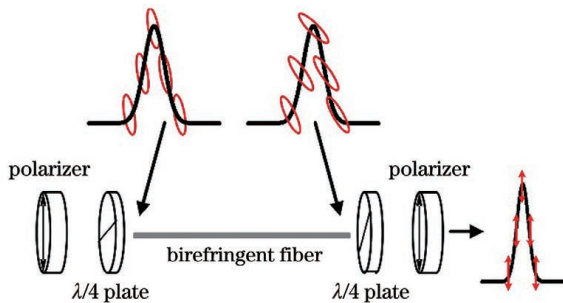


图 6 NPR 效应的工作原理

Fig. 6 Working mechanism of NPR effect

的透射率通过检偏器,则低强度的光会经历较大的损失,如此便形成可饱和吸收效应,通常该结构被称为“等效或人造 SA”。相比上一节中所介绍的材料 SA,由于 NPR 结构不受材料带隙及弛豫时间限制,理论上具有瞬态超快恢复时间,同时其工作波长也只受限于元器件本身带宽,更为重要的是该结构还具有较高的调制深度和损伤阈值,因此特别适用于高功率 fs 脉冲产生。

如前所述,虽然 MSA 锁模技术工作原理和系统结构简单,较早地被用于中红外锁模脉冲产生,但其脉冲宽度始终无法突破到 fs 水平,同时脉冲峰值功率也仅千余瓦,难以满足诸多实际应用需求,因此迫切需要探索其他锁模方式以突破该瓶颈。直到 2015 年,加拿大拉瓦尔大学 Duval 等^[69]利用掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤构建了如图 7(a)所示的 NPR 锁模环形振荡器,等效 SA 主要由四分之一波片、二分之一波片、偏振相关隔离器以及掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤构成,其中偏振相关隔离器同时充当起偏器和检偏器,值得注意的是该振荡腔中除 $3\ \text{m}$ 长增益光纤外并无额外器件提供非线性相移,实验中通过转动四分之一波片和半波片可在 $2.8\ \mu\text{m}$ 获得脉宽仅为 $207\ \text{fs}$ 且可自启动的近转化极限锁模脉冲输出,对应峰值功率为 $3.5\ \text{kW}$,该结果也标志着第一台 fs 量级中红外锁模光纤激光器的诞生。同时,还可以从光谱中看到明显的凯利(Kelly)边带,这意味着激光器处于孤子锁模状态。几乎在同一时间,澳大利亚悉尼大学的 Hu 等^[70]利用类似结构同样观察到了 $2.8\ \mu\text{m}$ 孤子锁模脉冲,并率先利用频率分辨光学快门(FROG)技术准确地对锁模脉冲的时域形态进行了表征,对应的脉冲宽度和峰值功率分别为 $497\ \text{fs}$ 和 $6.4\ \text{kW}$ 。在随后的几年中,国内外各个研究小组围绕增益光纤及谐振腔结构优化、色散及光谱调控,在脉冲压缩、功率/能量提升、波长拓展及调谐等性能提升方面开展了一系列研究,表 3 列举了近几年来公开报道的 NPR 锁模中红外氟化物光纤激光器研究结果。

2016 年,加拿大拉瓦尔大学的 Duval 等^[71]在之前工作基础上,仅对振荡腔增益光纤长度、输出耦合反射率及位置进行优化,在增益光纤长度为 $1.6\ \text{m}$,输出耦合透射率为 65% 时,获得了脉冲宽度为 $270\ \text{fs}$,峰值功率高达 $23\ \text{kW}$ 的 $2.8\ \mu\text{m}$ 孤子锁模脉冲,虽然系统中孤子难以自启动,但性能却获得了显著提升。通过理论仿真他们还发现^[71],腔内位于强水汽吸收带的 $2.8\ \mu\text{m}$ 锁模脉冲在振荡过程中虽然

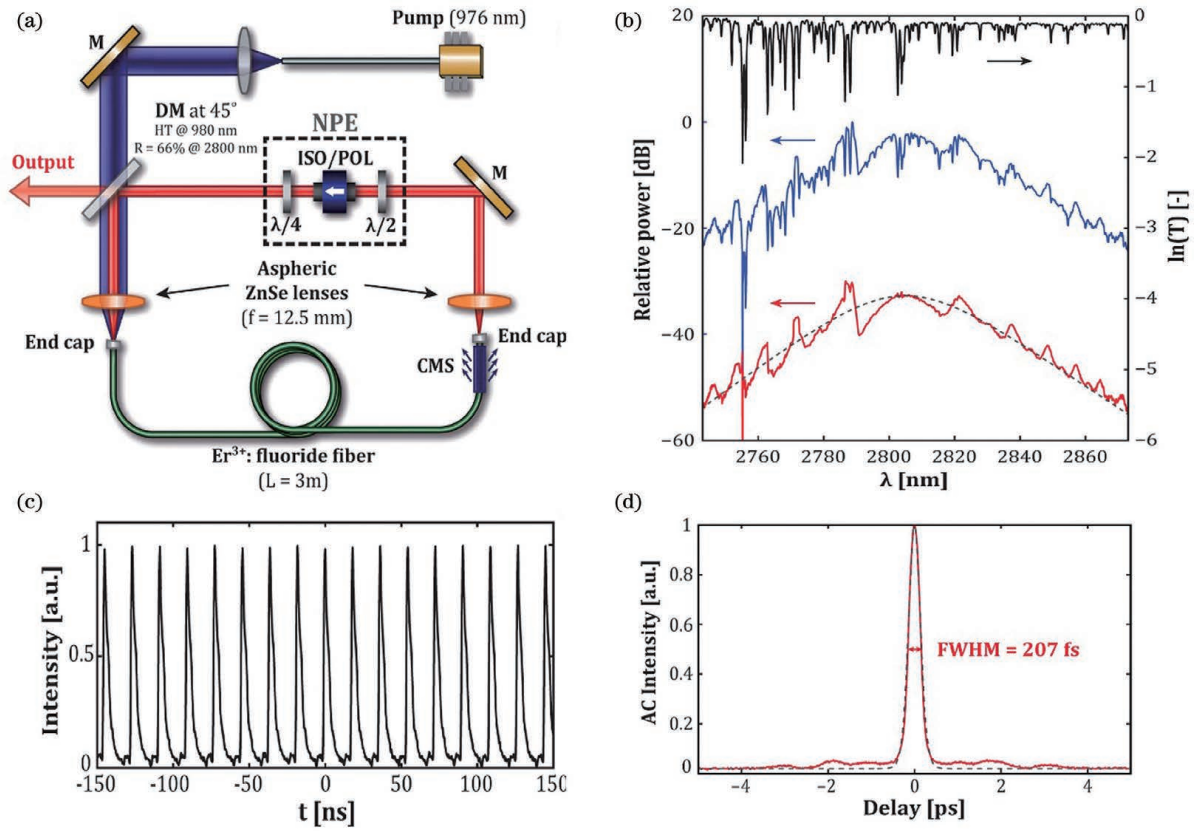


图 7 NPR 锁模的 $2.8 \mu\text{m}$ 掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤环形振荡器^[69]。(a)装置示意图;(b)光谱;(c)时域脉冲序列;
(d)自相关轨迹

Fig. 7 NPR mode-locked Er^{3+} -doped ZBLAN fluoride fiber ring oscillator at $2.8 \mu\text{m}$ ^[69]. (a) Schematic of setup;
(b) optical spectra;(c) time domain pulse sequence; (d) autocorrelation trace

表 3 NPR 锁模的中红外氟化物光纤激光器主要进展及性能参数

Table 3 Progress and performance parameters of NPR mode-locked mid-infrared fluoride fiber lasers

Dopants	λ /nm	τ /fs	P_{ave} /mW	P_{peak} /W	E /nJ	Time	Reference
Er^{3+}	2805	207	44	3.50	0.80	2015-07	[69]
Er^{3+}	2793	497	205	6.40	3.62	2015-09	[70]
Er^{3+}	2800	270	—	23.00	7.00	2016-03	[71]
$\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$	2876	180	327	37.00	7.60	2016-12	[72]
$\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$	2865	70	200	12.30	3.70	2017-12	[73]
Er^{3+}	2785	805	45	5.40	4.30	2018-11	[74]
Dy^{3+}	3050	828	175	3.11	2.92	2019-01	[75]
	3083	1010	204	4.21	4.83		
Er^{3+}	2785	430	124	—	5.30	2019-09	[76]
Er^{3+}	2791	215	—	43.30	9.30	2019-12	[77]
Er^{3+}	2783	131	317	22.68	2.97	2020-03	[78]
Er^{3+}	—	15.9	—	500.00	11.00	2020-05	[79]
Er^{3+}	2752–2807	239	136	9.60	2.60	2021-02	[80]
Er^{3+}	3545	580	216	5.50	3.20	2021-04	[81]

会经历一定程度的损耗,但由于孤子演化过程中的自整形机制,一旦谐振腔满足了稳定孤子的形成条件,腔内水汽吸收并不会对最终输出的稳态孤子性能参数(如峰值功率、能量及脉宽)产生显著影响,主要影响的是孤子建立所需的时间(较严重时甚至会影响到孤子锁模自启动),这也是与之前介绍的 MSA 锁模脉冲间的最大区别。然而当增益光纤过短时,由于腔内增益及累积的非线性相移减小,加上水汽吸收引起的局部相位扰动和滤波对时域窄化和光谱展宽的抑制作用,孤子脉冲变得难以形成。为了规避水汽吸收对孤子脉冲形成的影响,同年, Antipov 等^[72]利用 $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ 共掺 ZBLAN 光纤作为增益介质,在 $2.87\ \mu\text{m}$ 实现了可自启动的孤子锁模脉冲,脉冲宽度和峰值功率分别为 $37\ \text{kW}$ 和 $180\ \text{fs}$, 相较之前掺 Er^{3+} 系统,虽然工作波长只红移了 $70\ \text{nm}$ 左右,但却大幅削弱了水汽吸收的影响[从图 7(b) 顶部的水汽吸收线可以明显看出],输出性能也有了较大幅度提升。在此基础上, Woodward 等^[73] 将其作为种子注入到在该波段具有正色散且高非线性的无源 As_2S_3 光纤中,借助光纤自相位调制效应对孤子光谱展宽,再利用光栅对进行色散补偿压缩脉宽,最终获得了脉冲宽度仅为 $70\ \text{fs}$ (接近七个光学周期)的超短脉冲。

虽然 $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ 共掺 ZBLAN 光纤激光波长因偏离强水汽吸收区而在孤子脉冲产生方面有着较为明显的优势,但相比之下,掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤体系无论是在泵浦成效性^[82]、跃迁增益带宽^[72]、激光转化效率^[37,83] 方面,还是整个激光体系的发展成熟度方面都更胜一筹,且未来随着氟化物光纤功能器件的成熟,全光纤锁模掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器将消除水汽吸收对腔内孤子脉冲演化的影响,因此对于波长不敏感的应用场景而言, $2.8\ \mu\text{m}$ 掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器仍然是目前中红外波段实现超短脉冲产生最为理想的平台。2020 年,上海交通大学 Gu 等^[78] 通过适当缩短腔内掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤长度以降低腔内净色散,在牺牲阈值的情况下,获得了脉冲宽度为 $131\ \text{fs}$,峰值功率为 $22.68\ \text{kW}$,脉冲能量为 $2.97\ \text{nJ}$ 的孤子脉冲。然而受限于孤子面积定理,进一步提升的泵浦功率将导致脉冲分裂从而限制能量提升,随后他们通过在腔内加入在该波段具有大正色散的锗棒对色散进行有效管理迫使脉冲呼吸^[77],最终实现了脉冲宽度为 $215\ \text{fs}$,脉冲能量达 $9.3\ \text{nJ}$,峰值功率高达 $43.3\ \text{kW}$ 的拉伸脉冲输出。除了锁模脉冲的性能指标提升,德国马克斯-普

朗克研究所的研究团队也对 NPR 锁模的 $2.8\ \mu\text{m}$ 掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器中孤子动力学特性进行了深入研究,2019 年, Huang 等^[76] 在充满干燥氮气的密闭条件下,观察到了单孤子、孤子分子以及谐波锁模状态,并通过控制泵浦功率和腔内偏振态,同时借助时间拉伸色散傅里叶变换方式揭示了孤子准稳态、孤子塌陷、孤子对建立的动态演化过程。在此基础上, Huang 等^[79] 采用马丁内兹展宽器对孤子振荡器中的色散进行管理从而压缩脉宽,然后结合腔外马丁内兹展宽器色散调控展宽脉冲、有源掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤脉冲放大及同步压缩、高非线性光纤高阶孤子演化自压缩,最终输出了脉冲宽度仅为 $15.9\ \text{fs}$ (小于两个光学周期)的超短脉冲,所采用的实验装置和时域形态如图 8(a) 所示,对应的脉冲能量和峰值功率分别为 $11\ \text{nJ}$ 和 $500\ \text{kW}$,这也是目前中红外光纤激光器中所能获得的最窄脉冲宽度,几乎已经达到了与近红外波段同等水平。除了脉宽和功率/能量外,波长灵活性在实际应用中也具有重要需求,然而若采用 MSA 锁模氟化物光纤激光器^[56-57,61] 中常用的闪耀光栅作为分光元件,其较小的滤波带宽将会大幅窄化光谱从而展宽脉冲,为了实现 fs 脉冲波长调谐,最近,本文作者^[80] 根据振荡器输出的 fs 孤子脉冲实际光谱宽度,采用铌酸锂双折射晶体合理设计了利奥滤波器,将其引入到 NPR 锁模的掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器中率先实现了百 fs 量级的孤子波长调谐($2752\sim 2807\ \text{nm}$),所采用的实验装置和测量的光谱和自相关轨迹如图 8(b) 所示,此外,通过配合泵浦功率和滤波通道调节从而平衡不同波长间的增益,还在实验上观察到了双波长同步锁模脉冲产生。

为了满足不同波长需求,NPR 锁模技术也被应用到其他波长的中红外氟化物光纤激光器中用于孤子产生。2019 年,意大利米兰理工大学 Wang 等^[75] 搭建了 NPR 锁模的掺 Dy^{3+} ZBLAN 环形振荡器,通过改变增益光纤长度从而调整运转波长,最终在 $3.05\ \mu\text{m}$ 、 $3.08\ \mu\text{m}$ 以及 $3.18\ \mu\text{m}$ 均获得了数百到千余 fs 的孤子锁模脉冲。最近,澳大利亚阿德莱德大学 Bawden 等^[81] 搭建了如图 8(c) 所示的 NPR 锁模的双波长泵浦掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光环形振荡器,通过优化输出耦合反射率,最终在 $3.55\ \mu\text{m}$ 获得了脉冲宽度为 $580\ \text{fs}$,峰值功率为 $5.5\ \text{kW}$ 的近转化极限孤子锁模脉冲,这也是目前从锁模光纤振荡器能够直接获得的最长波长 fs 脉冲。

总体来看,自 2015 年 NPR 锁模技术被用于中

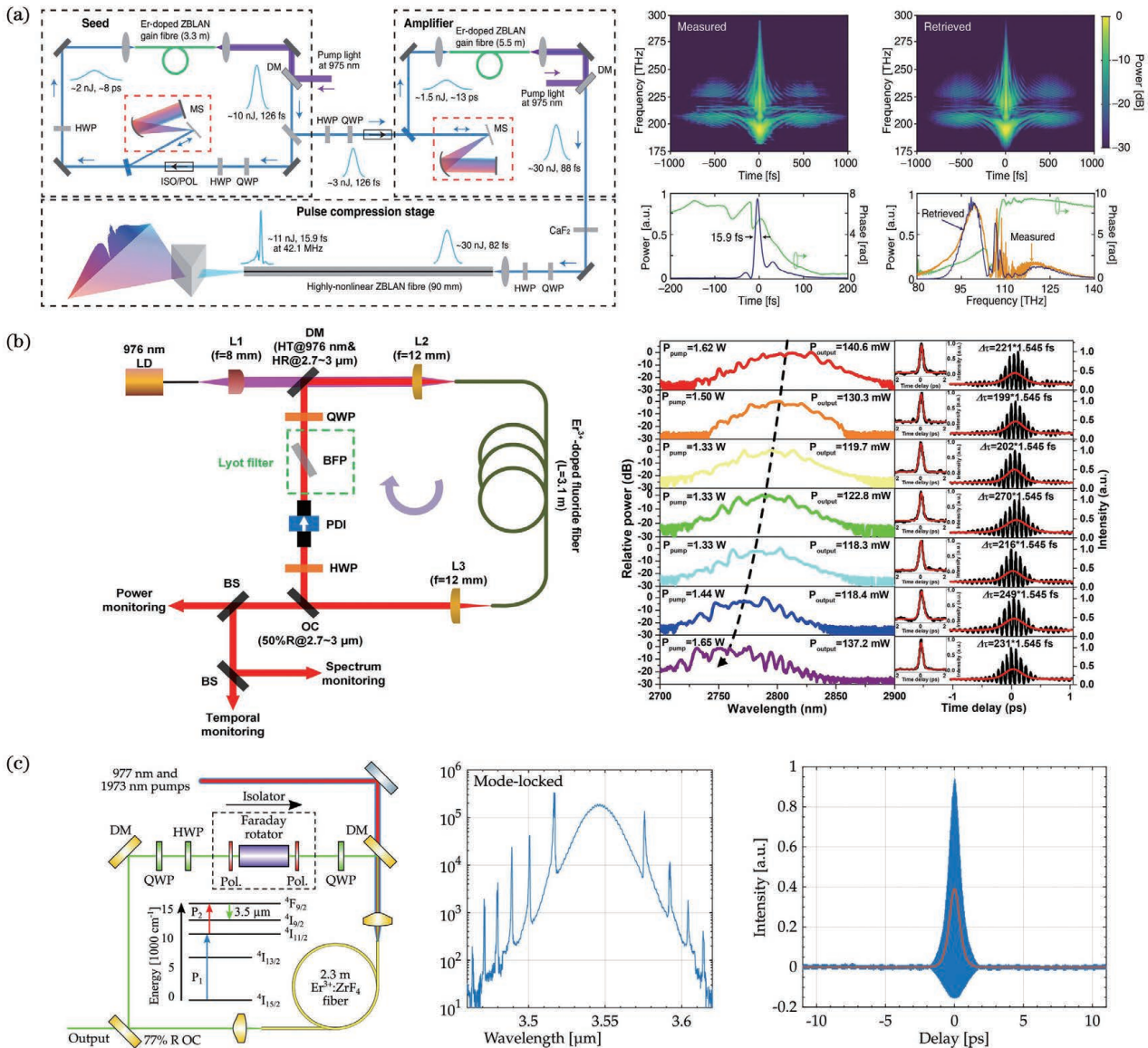


图 8 NPR 锁模的中红外氟化物光纤激光器的装置示意图和相关特性。(a)NPR 锁模的 2.8 μm 掺 Er³⁺ ZBLAN 光纤振荡器、放大器和压缩器^[79]；(b)NPR 锁模的可调谐掺 Er³⁺ ZBLAN 光纤振荡器装置示意图及光谱和自相关轨迹^[80]；(c)NPR 锁模的双波长泵浦掺 Er³⁺ ZBLAN 光纤振荡器^[81]

Fig. 8 Device schematic and correlated characteristic of NPR mode-locked mid-infrared fluoride fiber lasers. (a) NPR mode-locked 2.8 μm Er³⁺-doped ZBLAN fiber oscillator, amplifier, and compressor^[79]; (b) NPR mode-locked tunable Er³⁺-doped ZBLAN fiber oscillator^[80]; (c) NPR mode-locked dual-wavelength pumped Er³⁺-doped ZBLAN fiber oscillator^[81]

红外超短脉冲产生至今,该项技术已经在脉冲压缩、功率/能量提升、波长拓展方面都取得了较快的发展。相比 MSA 锁模,虽然该方法需要在腔内引入额外的偏振相关器件使得结构更加复杂,同时偏振态演化机理也决定着系统对环境的扰动更为敏感,但 NPR 结构超快恢复时间、高调制深度及高损伤阈值的特性使其成为目前产生 fs 孤子的理想选择。

3.3 FSF 锁模技术

关于 FSF 锁模技术的报道最早可以追溯到

1966 年^[84],近几十年,随着光纤激光器的快速发展,该技术逐渐被用于产生 1~2 μm 近红外波段超短脉冲^[85-89],但相比前面提到的两种锁模方式,该技术由于成本相对较高,并未受到过多关注。然而由于 FSF 机制的引入,超短脉冲的建立表现出了与传统可饱和吸收机制完全不同的动力学过程,具体可通过如图 9 所示^[90]的过程来表示。无论是材料 SA 还是由 NPR 结构构建的人造 SA,可以将其等效为一个腔内损耗调制器件,在周期性强度调制作用下,时

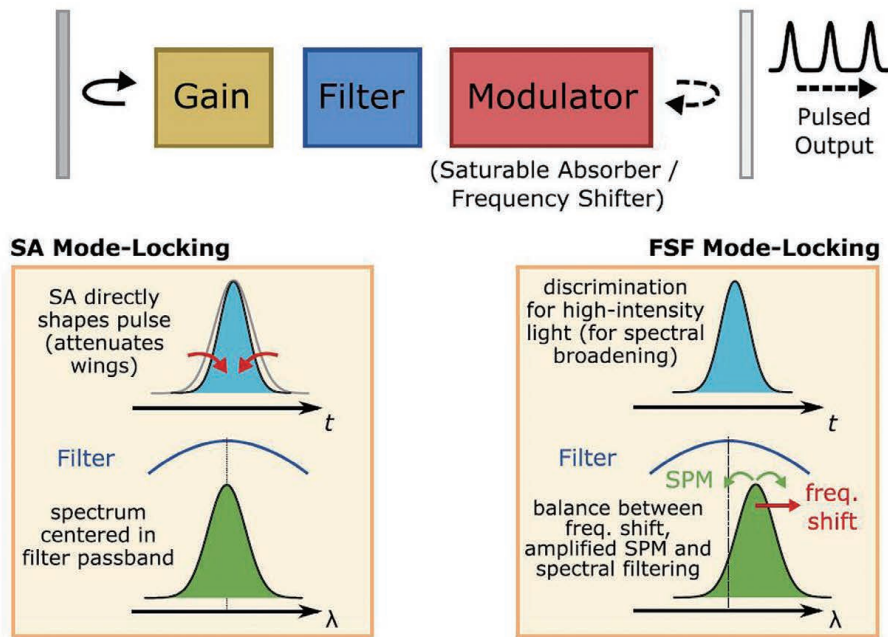


图 9 SA 和 FSF 锁模机理对比^[90]

Fig. 9 Comparison of SA and FSF mode-locking mechanisms^[90]

域上会表现出脉冲窄化,频域上则会不断激发间隔等于纵模间隔的边频,同时实现增益带内的相位锁定,从而产生超短脉冲,此时若施加一个带通滤波器便可实现波长选择。与上述过程不同,FSF 激光器采用频移器代替损耗调制器件,对腔内不断振荡的激光施加频移,当波长被频移出由增益介质和滤波器所决定的增益带时,激光将被熄灭。然而在有源光纤中,放大的光信号所激发的自相位调制会导致光谱展宽,使具有高强度光谱分量的这部分能量向着与频移相反的方向转移,最终这部分分量将一直处于滤波器通带内,从而表现出强度相关性。由于

自相位调制产生的光谱分量具有相位相关性,通过腔内的不断往返,频移会将这种相位相关性不断传递给相邻光谱分量,最终在增益带内建立起相位分布,实现与传统锁模过程类似的强度相干迭加。严格意义来讲,由于频移器持续的波长频移抑制了连续激光振荡从而阻碍了纵模建立,FSF 所获得的超短脉冲并不能称为锁模脉冲,但由于其与传统锁模脉冲具有诸多相似的特性,因此仍然将该方法归结为锁模技术的范畴。近几年,FSF 锁模技术开始被应用于中红外氟化物光纤激光器中,表 4 列举了目前的发展情况。

表 4 FSF 锁模的中红外氟化物光纤激光器的进展及性能参数

Table 4 Progress and performance parameters of FSF mode-locked mid-infrared fluoride fiber lasers

Dopants	Frequency shifter	λ /nm	τ /ps	P_{ave} /mW	P_{peak} /W	E /nJ	Time	Reference
Dy ³⁺	AOTF	2970–3300	33	120	–	2.7	2018-11	[90]
Ho ³⁺ /Pr ³⁺	AOM	2864	4.7	300	1900	10	2019-04	[91]
Er ³⁺	AOTF	3397–3612	53	208	–	1.38	2020-01	[92]
Ho ³⁺ /Pr ³⁺	AOTF	2840–2940	27	315	170	8.1	2020-10	[93]
Er ³⁺	AOTF/AOM	2769/2769	31/20	345	–	–	2021-06	[94]
Dy ³⁺	AOM	3075	0.8 (estimated)	–	–	–	2021-06	[94]

2018 年,澳大利亚麦考瑞大学 Woodward 等^[90]率先利用基于多普勒频移的商用 TeO₂ 声光可调谐滤波器(AOTF)作为频移器兼滤波元件,掺 Dy³⁺ ZBLAN 光纤作为增益介质,搭建了如图 10(a)

所示的 FSF 锁模光纤激光器,其中 AOFT 由外部射频信号驱动,一级衍射光用于腔内谐振,零级衍射光则用于耦合输出,谐振腔由贴合于泵浦光纤端面的二色镜和镀金反射镜构成,通过控制射频信号频

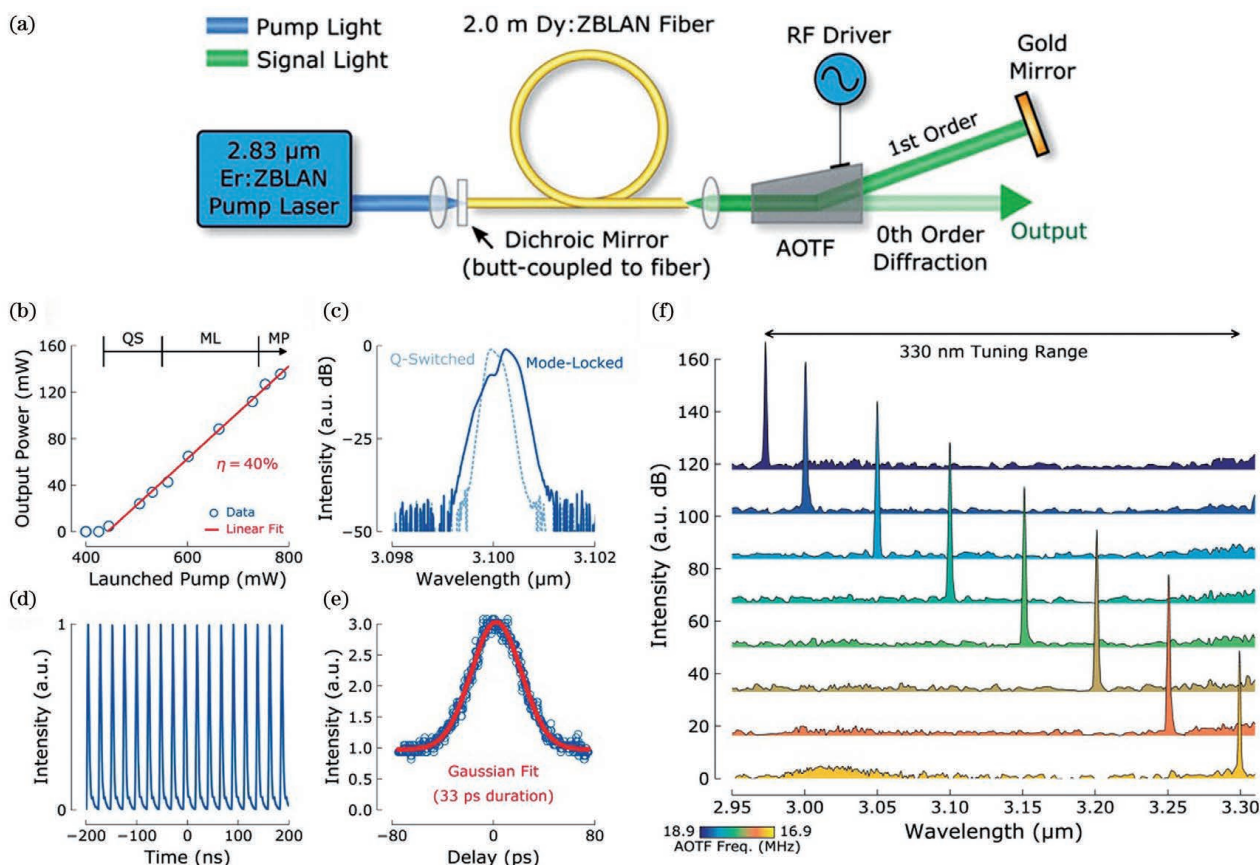


图 10 AOTF FSF 锁模的掺 Dy^{3+} ZBLAN 光纤激光器^[90]。(a) 实验装置；(b) 功率演化；(c) 调 Q 和锁模光谱；(d) 时域脉冲序列；(e) 自相关轨迹；(f) 调谐的锁模光谱

Fig. 10 FSF mode-locked Dy^{3+} -doped ZBLAN fiber laser based on AOTF^[90]. (a) Experimental setup; (b) power evolution; (c) Q-switched and mode-locked optical spectra; (d) time domain pulse sequence; (e) autocorrelation trace; (f) tuned mode-locked spectra

率可对滤波器的中心波长进行调节,从而调谐输出波长。当输出波长固定在具有强增益的 $3.1 \mu\text{m}$ 时,随着泵浦功率增加,激光器依次经历调 Q、基频锁模以及谐波锁模状态。仔细观察可以发现,FSF 锁模光谱具有明显的不对称“肩”形[如图 10(c)所示],这主要是由自相位调制光谱展宽、滤波以及频移等相互作用引起的,是 FSF 锁模脉冲光谱的典型特征^[95],最终在基频锁模状态下可以获得脉冲宽度为 33 ps,平均功率和脉冲能量分别为 120 mW 和 2.7 nJ 的脉冲输出,该脉宽主要受限于滤波器相对较小的工作带宽。当对滤波器工作波长进行调节时,可以在 $2.97 \sim 3.3 \mu\text{m}$ 波长区间实现锁模脉冲波长调谐。值得强调的是,由于该 FSF 锁模系统中所采用 AOTF 是偏振相关器件,输出脉冲具有高达 24 dB 的偏振消光比,这也为中红外线偏振锁模脉冲的产生提供了一种简单可靠的途径。为了消除 AOTF 带宽限制(约 5 nm)导致的脉冲较快问题,2019 年, Majewski 等^[91]利用声光调制器(AOM)代

替 AOTF,在 $2.86 \mu\text{m}$ $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ 共掺 ZBLAN 光纤激光器中通过 FSF 方式实现了 4.7 ps 的锁模脉冲输出,同时他们还发现当 AOM 的射频驱动频率和锁模基频频率接近时,FSF 和调频机制可能会同时对脉冲形态产生影响进而表现出调 Q 锁模或多脉冲行为。随后澳大利亚麦考瑞大学 Pawliszewska 等^[92]和阿德莱德大学 Henderson-Sapir 等^[93]又利用 AOTF 通过 FSF 方式在 $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ 共掺和 $1973+977 \text{ nm}$ 双波长泵浦掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器中分别实现了 $2.84 \sim 2.94 \mu\text{m}$ 和 $3.4 \sim 3.61 \mu\text{m}$ 波长可调谐的数十 ps 锁模脉冲输出。为了揭示局部空间结构的谐振腔中水汽吸收窗口对 ps 锁模脉冲性能的影响,最近,澳大利亚麦考瑞大学 Majewski 等^[94]分别利用 AOTF 和 AOM 搭建了波长位于 $2.7 \sim 2.8 \mu\text{m}$ 强水汽吸收区的 FSF 锁模掺 Er^{3+} ZBLAN 光纤激光器,通过调谐波长发现水汽吸收窗口大小会严重影响锁模脉冲光谱进而限制脉宽压缩,为了进一步佐证该观点,他们又利用

AOM 搭建了如图 11(a) 所示波长位于 $3.07 \mu\text{m}$ 的 FSF 锁模掺 Dy^{3+} ZBLAN 光纤激光器, 由于该波长远离水汽吸收带, 因此几乎可排除其对脉冲带宽影响, 最终获得了 3 dB 近 12 nm 的孤子锁模脉冲, 其光谱如图 11(b) 所示, 该结果也暗示了 FSF 锁模技术实现中红外孤子的可行性。虽然由于孤子脉冲的不稳定性和功率较低的问题限制了进一步的脉宽表征, 但根据转化极限近似可以获得 825 fs 的脉冲宽度, 该水平与 NPR 锁模的掺 Dy^{3+} ZBLAN 光纤激光器^[75] 中所获得的孤子脉冲宽度接近, 这也再次证实了水汽吸收窗口宽度是非孤子锁模脉冲宽度的重要限制因素。

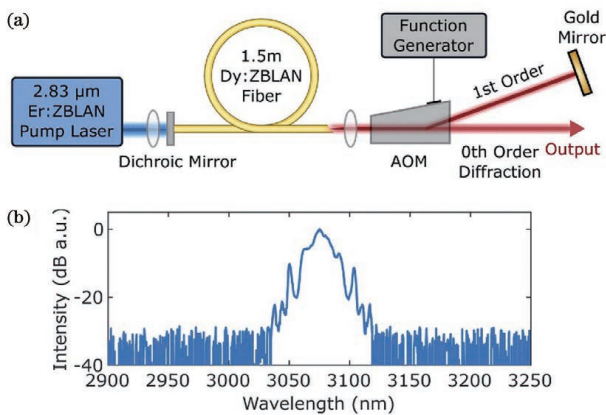


图 11 AOM FSF 锁模的掺 Dy^{3+} ZBLAN 光纤激光器^[94]。

(a) 实验装置; (b) 光谱

Fig. 11 FSF mode-locked Dy^{3+} -doped ZBLAN fiber laser based on AOM^[94]. (a) Experimental setup; (b) optical spectrum

相比 MSA 和 NPR, 虽然 FSF 锁模技术从 2018 年才开始被用于中红外超短脉冲产生, 但其简单的结构、优良的可靠性和重复性, 以及出色的波长调谐能力使得该方法在近几年被广泛应用于不同工作波长的中红外氟化物光纤激光器中, 最宽波长调谐范围超过 330 nm^[90], 最窄脉冲宽度也达到了百 fs 水平^[94]。未来在 FSF 基础上, 通过引入可饱和吸收或孤子整形机制, 并借助中红外增益介质的宽辐射带, 有望实现超短脉冲的大幅窄化。

4 结束语

新应用推动新技术, 新技术衍生新应用。21 世纪, 随着红外应用对激光器小型化和集成化需求的不断提升, 以氟化物光纤激光器为代表的中红外激光光源取得了快速发展, 这为中红外超短脉冲的产生提供了新的平台。锁模作为实现超短脉冲的重要技术途径, 其不同实现方法, 如 MSA、NPR、FSF 等,

也相继被用于氟化物光纤激光器中产生中红外超短脉冲, 且在性能指标上有较大突破, 例如最高峰值功率已超过 500 kW^[79], 最短脉冲宽度低至 15.9 fs (小于两个光学周期)^[79]、最长脉冲波长超过 $3.6 \mu\text{m}$ ^[92] 等等, 但相较于成熟的近红外波段, 无论是在性能指标, 还是系统集成性、可靠性及稳定性方面都还有较大的差距。基于近年来中红外锁模氟化物光纤激光器发展现状, 本文总结与分析了目前存在的一些问题, 并凝练了几个未来需要努力的方向:

1) 全光纤化问题。毫无疑问, 全光纤化结构是光纤激光器发展的理想形态, 在近红外波段, 基于石英光纤的各种光纤型功能器件, 如合束器、耦合器、隔离器、滤波器、环形器以及锁模器件等, 已经达到了较高的商用化水平。然而, 在中红外波段, 由于光纤功能器件的缺乏以及高质量光纤处理技术的不完善和较低的普及程度, 整体全光纤化水平较低, 尤其是锁模光纤激光器, 全光纤化结构仍然处于实验室阶段^[59], 大部分系统均采用局部空间结构, 虽然以加拿大拉瓦尔大学和澳大利亚阿德莱德大学为代表的国外高校所孵化出的相关公司已经能够提供所谓商用化的中红外超短脉冲光纤激光器, 但目前仍然无法避免系统内的局部空间化。因此, 研制中红外锁模产生所亟须的有源和无源光纤功能器件 (如光纤型 SESAM、隔离器及耦合器等) 就显得尤为重要, 而科研界和工业界的强强联合则是最有效的解决手段。

2) 锁模脉冲性能提升问题。自 2012 年第一台中红外锁模氟化物光纤诞生起, 科研工作者们通过不断优化系统、设计新结构并采用新技术, 在脉冲宽度压缩、功率/能量提升、波长拓展、噪声抑制及稳定性提升等方面取得了快速进展, 几乎每过两年锁模脉冲的某一项性能指标就会显著突破。但是仍然存在着诸多的问题需要解决和研究, 例如 15.9 fs 的中红外脉冲宽度即使放在近红外波段也是一个相当窄的水平, 但目前的实现方法较复杂, 需要通过腔外增益提取、色散补偿及非线性演化等多个过程, 这无疑加大了系统的复杂程度, 因此是否能够从锁模振荡器中直接产生数十 fs 的中红外超短脉冲就成为需要努力的方向。已报道的 fs 中红外锁模氟化物光纤振荡器主要工作在传统孤子和拉伸孤子状态, 虽然相比传统孤子, 基于腔内色散管理的拉伸孤子在一定程度上降低了非线性相移的累积, 但受限于平均孤子面积定理, 其脉冲能量仍然难以大幅提升, 为了解决该问题就需要使振荡器工作在其他状态, 如

自相似、耗散孤子等,因此如何在中红外波段产生高能量的 fs 锁模脉冲就成为重要的研究课题,当然不可否认,腔外技术的采用将有助于进一步提升脉冲性能。目前连续氟化物光纤激光器的最长工作波长已经达到 $3.92\ \mu\text{m}$,但最长锁模脉冲波长仅为 $3.61\ \mu\text{m}$,所以进一步拓展锁模脉冲波长也是值得开展的研究工作。

3) 锁模技术的多样化问题。如前所述,MSA、NPR 和 FSF 是目前中红外氟化物光纤激光器中最常用的三种技术,加上 AML、NLM 和 SML,也仅六种技术在中红外波段被应用。相比近红外波段,诸多极具优势的锁模技术还并未在中红外波段被发展起来,例如非线性光环形镜(NOLM)及非线性放大环形镜(NALM)锁模技术可有效解决 NPR 技术存在的环境稳定性较差的问题;Mamyshev 再生锁模技术可有效抑制连续分量造成的锁模不稳定性,大幅提升脉冲峰值功率;非线性多模干涉(NLMMI)锁模技术则具有先天的全光纤和低成本优势。因此进一步拓展中红外光纤激光锁模技术不但有助于提升激光器本身的性能,同时也为不同实际应用需求提供了更多的选择。

参 考 文 献

- [1] Amini-Nik S, Kraemer D, Cowan M L, et al. Ultrafast mid-IR laser scalpel: protein signals of the fundamental limits to minimally invasive surgery[J]. PLoS One, 2010, 5(9): e13053.
- [2] Bérubé J P, Frayssinous C, Lapointe J, et al. Direct inscription of on-surface waveguides in polymers using a mid-IR fiber laser[J]. Optics Express, 2019, 27(21): 31013-31022.
- [3] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers [J]. Science, 2012, 336(6086): 1287-1291.
- [4] Wolter B, Lemell C, Baudisch M, et al. Formation of very-low-energy states crossing the ionization threshold of argon atoms in strong mid-infrared fields [J]. Physical Review A, 2014, 90(6): 063424.
- [5] Blaga C I, Xu J L, DiChiara A D, et al. Imaging ultrafast molecular dynamics with laser-induced electron diffraction [J]. Nature, 2012, 483(7388): 194-197.
- [6] Loza-Alvarez P, Brown C T A, Reid D T, et al. High-repetition-rate ultrashort-pulse optical parametric oscillator continuously tunable from 2.8 to 6.8 μm [J]. Optics Letters, 1999, 24(21): 1523-1525.
- [7] Zhao K, Zhong H Z, Yuan P, et al. Generation of 120 GW mid-infrared pulses from a widely tunable noncollinear optical parametric amplifier [J]. Optics Letters, 2013, 38(13): 2159-2161.
- [8] Fuji T, Suzuki T. Generation of sub-two-cycle mid-infrared pulses by four-wave mixing through filamentation in air [J]. Optics Letters, 2007, 32(22): 3330-3332.
- [9] Tang Y X, Wright L G, Charan K, et al. Generation of intense 100 fs solitons tunable from 2 to 4.3 μm in fluoride fiber [J]. Optica, 2016, 3(9): 948-951.
- [10] Okhotnikov O G, Gomes L, Xiang N, et al. Mode-locked ytterbium fiber laser tunable in the 980-1070-nm spectral range [J]. Optics Letters, 2003, 28(17): 1522-1524.
- [11] Kafka J D, Baer T, Hall D W. Mode-locked erbium-doped fiber laser with soliton pulseshaping [J]. Optics Letters, 1989, 14(22): 1269-1271.
- [12] Zhang M, Kelleher E J R, Torrisi F, et al. Tm-doped fiber laser mode-locked by graphene-polymer composite [J]. Optics Express, 2012, 20(22): 25077-25084.
- [13] Pawliszewska M, Martynkien T, Przewłoka A, et al. Dispersion-managed Ho-doped fiber laser mode-locked with a graphene saturable absorber [J]. Optics Letters, 2018, 43(1): 38-41.
- [14] Liu Z W, Ziegler Z M, Wright L G, et al. Megawatt peak power from a Mamyshev oscillator [J]. Optica, 2017, 4(6): 649-654.
- [15] Jia S J, Jia Z X, Yao C F, et al. 2875 nm lasing from Ho³⁺-doped fluoroindate glass fibers [J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2018, 30(4): 323-326.
- [16] Jia S J, Jia Z X, Yao C F, et al. Ho³⁺ doped fluoroaluminate glass fibers for 2.9 μm lasing [J]. Laser Physics, 2018, 28(1): 015802.
- [17] He H Y, Jia Z X, Jia S J, et al. Ho³⁺/Pr³⁺ co-doped AlF₃ based glass fibers for efficient $\sim 2.9\ \mu\text{m}$ lasers [J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2020, 32(23): 1489-1492.
- [18] Liu M, Zhang J Q, Xu N N, et al. Room-temperature watt-level and tunable $\sim 3\ \mu\text{m}$ lasers in Ho³⁺/Pr³⁺ co-doped AlF₃-based glass fiber [J]. Optics Letters, 2021, 46(10): 2417-2420.
- [19] He H Y, Jia Z X, Wang T, et al. Intense emission at $\sim 3.3\ \mu\text{m}$ from Er³⁺-doped fluoroindate glass fiber [J]. Optics Letters, 2021, 46(5): 1057-1060.
- [20] Henderson-Sapir O, Malouf A, Bawden N, et al. Recent advances in 3.5 μm erbium-doped mid-infrared fiber lasers [J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2017, 23(3):

- 0900509.
- [21] Maes F, Fortin V, Poulain S, et al. Room-temperature fiber laser at $3.92\ \mu\text{m}$ [J]. *Optica*, 2018, 5(7): 761-764.
- [22] Majewski M R, Woodward R I, Carreé J Y, et al. Emission beyond $4\ \mu\text{m}$ and mid-infrared lasing in a dysprosium-doped indium fluoride (InF_3) fiber [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(8): 1926-1929.
- [23] Wang C C, Luo H Y, Yang J, et al. Watt-level $\sim 3.5\ \mu\text{m}$ Er^{3+} -doped ZrF_4 fiber laser using dual-wavelength pumping at 655 and 1981 nm [J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2021, 33(15): 784-787.
- [24] Li J F, Hudson D D, Jackson S D. High-power diode-pumped fiber laser operating at $3\ \mu\text{m}$ [J]. *Optics Letters*, 2011, 36(18): 3642-3644.
- [25] Majewski M R, Jackson S D. Highly efficient mid-infrared dysprosium fiber laser [J]. *Optics Letters*, 2016, 41(10): 2173-2176.
- [26] Majewski M R, Woodward R I, Jackson S D. Dysprosium-doped ZBLAN fiber laser tunable from $2.8\ \mu\text{m}$ to $3.4\ \mu\text{m}$, pumped at $1.7\ \mu\text{m}$ [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(5): 971-974.
- [27] Tsang Y H, El-Taher A E, King T A, et al. Efficient $2.96\ \mu\text{m}$ dysprosium-doped fluoride fibre laser pumped with a Nd:YAG laser operating at $1.3\ \mu\text{m}$ [J]. *Optics Express*, 2006, 14(2): 678-685.
- [28] Jackson S D. Continuous wave $2.9\ \mu\text{m}$ dysprosium-doped fluoride fiber laser [J]. *Applied Physics Letters*, 2003, 83(7): 1316-1318.
- [29] Amin M Z, Majewski M R, Woodward R I, et al. Novel near-infrared pump wavelengths for dysprosium fiber lasers [J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2020, 38(20): 5801-5808.
- [30] Aydin Y O, Fortin V, Vallée R, et al. Towards power scaling of $2.8\ \mu\text{m}$ fiber lasers [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(18): 4542-4545.
- [31] Tokita S, Hirokane M, Murakami M, et al. Stable 10 W Er^{3+} ZBLAN fiber laser operating at $2.71\text{--}2.88\ \mu\text{m}$ [J]. *Optics Letters*, 2010, 35(23): 3943-3945.
- [32] Maes F, Fortin V, Bernier M, et al. 5.6 W monolithic fiber laser at $3.55\ \mu\text{m}$ [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(11): 2054-2057.
- [33] Henderson-Sapir O, Jackson S D, Ottaway D J. Versatile and widely tunable mid-infrared erbium doped ZBLAN fiber laser [J]. *Optics Letters*, 2016, 41(7): 1676-1679.
- [34] Crawford S, Hudson D D, Jackson S D. High-power broadly tunable $3\text{-}\mu\text{m}$ fiber laser for the measurement of optical fiber loss [J]. *IEEE Photonics Journal*, 2015, 7(3): 1-9.
- [35] Carbonnier C, Többen H, Unrau U B. Room temperature CW fibre laser at $3.22\ \mu\text{m}$ [J]. *Electronics Letters*, 1998, 34(9): 893-894.
- [36] Fortin V, Jobin F, Larose M, et al. 10-W-level monolithic dysprosium-doped fiber laser at $3.24\ \mu\text{m}$ [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(3): 491-494.
- [37] Bernier M, Faucher D, Caron N, et al. Highly stable and efficient erbium-doped $2.8\ \mu\text{m}$ all fiber laser [J]. *Optics Express*, 2009, 17(19): 16941-16946.
- [38] Hu T, Hudson D D, Jackson S D. FM-mode-locked fiber laser operating at $2.9\ \mu\text{m}$ [C] // 2013 Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEOPR), June 30-July 4, 2013, Kyoto, Japan. New York: IEEE Press, 2013: 1-2.
- [39] Zhao L N, Wang J R, Huang S W. Nonlinear-mirror mode-locked Er^{3+} : ZBLAN fiber laser [C] // Laser Congress 2018 (ASSL), November 4-8, 2018, Boston, Massachusetts. Washington, D. C.: OSA, 2018: ATu2A.27.
- [40] Zhang X, Shu S L, Cai K D, et al. Pulse control in self-mode-locked $2.8\ \mu\text{m}$ Er-doped fluoride fiber lasers [J]. *Optics & Laser Technology*, 2020, 129: 106285.
- [41] Keller U, Knox W H, Roskos H. Coupled-cavity resonant passive mode-locked Ti:sapphire laser [J]. *Optics Letters*, 1990, 15(23): 1377-1379.
- [42] Frerichs C, Unrau U B. Passive Q-switching and mode-locking of erbium-doped fluoride fiber lasers at $2.7\ \mu\text{m}$ [J]. *Optical Fiber Technology*, 1996, 2(4): 358-366.
- [43] Li J F, Hudson D D, Liu Y, et al. Efficient $2.87\ \mu\text{m}$ fiber laser passively switched using a semiconductor saturable absorber mirror [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(18): 3747-3749.
- [44] Wei C, Zhu X S, Norwood R A, et al. Passively continuous-wave mode-locked Er^{3+} -doped ZBLAN fiber laser at $2.8\ \mu\text{m}$ [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(18): 3849-3851.
- [45] Fedorov V V, Mirov S B, Gallian A, et al. $3.77\text{--}5.05\text{-}\mu\text{m}$ tunable solid-state lasers based on Fe^{2+} -doped ZnSe crystals operating at low and room temperatures [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 2006, 42(9): 907-917.
- [46] Wan P, Yang L M, Liu J. Towards high power and high energy femtosecond fiber lasers [J]. *Proceedings of SPIE*, 2014, 8961: 89610K.
- [47] Hu T, Hudson D D, Jackson S D. Stable, self-starting, passively mode-locked fiber ring laser of the $3\ \mu\text{m}$ class [J]. *Optics Letters*, 2014, 39(7): 2133-2136.

- [48] Zhu X S, Wang F Q, Zhu G W, et al. Graphene enabled 3 μm pulsed fiber lasers[C]//2014 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), June 8-13, 2014, San Jose, California. Washington, D. C.: OSA, 2014: STu1L.5.
- [49] Haboucha A, Fortin V, Bernier M, et al. Fiber Bragg grating stabilization of a passively mode-locked 2.8 μm Er^{3+} : fluoride glass fiber laser[J]. Optics Letters, 2014, 39(11): 3294-3297.
- [50] Yin K, Jiang T, Zheng X, et al. Mid-infrared ultra-short mode-locked fiber laser utilizing topological insulator Bi_2Te_3 nano-sheets as the saturable absorber [EB/OL]. (2015-05-23) [2021-09-17]. <https://arxiv.org/abs/1505.06322>.
- [51] Tang P H, Qin Z P, Liu J, et al. Watt-level passively mode-locked Er^{3+} -doped ZBLAN fiber laser at 2.8 μm [J]. Optics Letters, 2015, 40(21): 4855-4858.
- [52] Qin Z P, Xie G Q, Zhao C J, et al. Mid-infrared mode-locked pulse generation with multilayer black phosphorus as saturable absorber[J]. Optics Letters, 2016, 41(1): 56-59.
- [53] Zhu G W, Zhu X S, Wang F Q, et al. Graphene mode-locked fiber laser at 2.8 μm [J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2016, 28(1): 7-10.
- [54] Li J F, Luo H Y, Zhai B, et al. Black phosphorus: a two-dimension saturable absorption material for mid-infrared Q-switched and mode-locked fiber lasers[J]. Scientific Reports, 2016, 6: 30361.
- [55] Zhu C H, Wang F Q, Meng Y F, et al. A robust and tuneable mid-infrared optical switch enabled by bulk Dirac fermions[J]. Nature Communications, 2017, 8: 14111.
- [56] Wei C, Shi H X, Luo H Y, et al. 34 nm-wavelength-tunable picosecond $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ -codoped ZBLAN fiber laser[J]. Optics Express, 2017, 25(16): 19170-19178.
- [57] Shen Y L, Wang Y S, Chen H W, et al. Wavelength-tunable passively mode-locked mid-infrared Er^{3+} -doped ZBLAN fiber laser[J]. Scientific Reports, 2017, 7(1): 14913.
- [58] Qin Z P, Hai T, Xie G Q, et al. Black phosphorus Q-switched and mode-locked mid-infrared Er^{3+} :ZBLAN fiber laser at 3.5 μm wavelength[J]. Optics Express, 2018, 26(7): 8224-8231.
- [59] Qin Z P, Xie G Q, Ma J G, et al. 2.8 μm all-fiber Q-switched and mode-locked lasers with black phosphorus[J]. Photonics Research, 2018, 6(11): 1074-1078.
- [60] Wei C, Lü Y J, Shi H X, et al. Mid-infrared Q-switched and mode-locked fiber lasers at 2.87 μm based on carbon nanotube[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2019, 25(4): 1-6.
- [61] Wei C, Lü Y J, Li Q R, et al. Wideband tunable, carbon nanotube mode-locked fiber laser emitting at wavelengths around 3 μm [J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2019, 31(11): 869-872.
- [62] Paradis P, Duval S, Fortin V, et al. Towards ultrafast all-fiber laser at 2.8 μm based on a SESAM and a fiber Bragg grating [C]//2019 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC), June 23-27, 2019, Munich, Germany. New York: IEEE Press, 2019.
- [63] Guo C Y, Wei J C, Yan P G, et al. Mode-locked fiber laser at 2.8 μm using a chemical-vapor-deposited WSe_2 saturable absorber mirror[J]. Applied Physics Express, 2020, 13(1): 012013.
- [64] Bharathan G, Jiang X T, Zhang H, et al. Mode-locked mid-IR fibre laser based on 2D nanomaterials [J]. Proceedings of SPIE, 2019, 11200: 112002B.
- [65] Luo H Y, Li S Q, Wu X D, et al. Unlocking the ultrafast potential of gold nanowires for mode-locking in the mid-infrared region[J]. Optics Letters, 2021, 46(7): 1562-1565.
- [66] Bharathan G, Xu L Y, Jiang X T, et al. MXene and PtSe_2 saturable absorbers for all-fibre ultrafast mid-infrared lasers[J]. Optical Materials Express, 2021, 11(7): 1898-1906.
- [67] Luo H Y, Wang Y Z, Li J F, et al. High-stability, linearly polarized mode-locking generation from a polarization-maintaining fiber oscillator around 2.8 μm [J]. Optics Letters, 2021, 46(18): 4550-4553.
- [68] Fang Z Q, Zhang C X, Liu J, et al. 3.46 μm Q-switched Er^{3+} :ZBLAN fiber laser based on a semiconductor saturable absorber mirror[J]. Optics & Laser Technology, 2021, 141: 107131.
- [69] Duval S, Bernier M, Fortin V, et al. Femtosecond fiber lasers reach the mid-infrared[J]. Optica, 2015, 2(7): 623-626.
- [70] Hu T, Jackson S D, Hudson D D. Ultrafast pulses from a mid-infrared fiberlaser [J]. Optics Letters, 2015, 40(18): 4226-4228.
- [71] Duval S, Olivier M, Fortin V, et al. 23-kW peak power femtosecond pulses from a mode-locked fiber ring laser at 2.8 μm [J]. Proceedings of SPIE, 2016, 9728: 972802.
- [72] Antipov S, Hudson D D, Fuerbach A, et al. High-power mid-infrared femtosecond fiber laser in the water vapor transmission window[J]. Optica, 2016,

- 3(12): 1373-1376.
- [73] Woodward R I, Hudson D D, Fuerbach A, et al. Generation of 70-fs pulses at 2.86 μm from a mid-infrared fiber laser [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(23): 4893-4896.
- [74] Huang J P, Pang M, Jiang X, et al. Pulse fragmentation and multi-soliton states in mid-infrared mode-locked fiber laser [C] // *Advanced Solid State Lasers*, November 4-8, 2018, Boston, Massachusetts. Washington, D.C.: OSA, 2018: AM6A.25.
- [75] Wang Y, Jobin F, Duval S, et al. Ultrafast Dy^{3+} : fluoride fiber laser beyond 3 μm [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(2): 395-398.
- [76] Huang J, Pang M, Jiang X, et al. Route from single-pulse to multi-pulse states in a mid-infrared soliton fiber laser [J]. *Optics Express*, 2019, 27(19): 26392-26404.
- [77] Qin Z P, Xie G Q, Gu H A, et al. Mode-locked 2.8 μm fluoride fiber laser: from soliton to breathing pulse [J]. *Advances in Optics and Photonics*, 2019, 1(6): 065001.
- [78] Gu H A, Qin Z P, Xie G Q, et al. Generation of 131 fs mode-locked pulses from 2.8 μm $\text{Er}:\text{ZBLAN}$ fiber laser [J]. *Chinese Optics Letters*, 2020, 18(3): 031402.
- [79] Huang J, Pang M, Jiang X, et al. Sub-two-cycle octave-spanning mid-infrared fiber laser [J]. *Optica*, 2020, 7(6): 574-579.
- [80] Luo H Y, Yang J, Li J F, et al. Tunable sub-300 fs soliton and switchable dual-wavelength pulse generation from a mode-locked fiber oscillator around 2.8 μm [J]. *Optics Letters*, 2021, 46(4): 841-844.
- [81] Bawden N, Henderson-Sapir O, Jackson S D, et al. Ultrafast 3.5 μm fiber laser [J]. *Optics Letters*, 2021, 46(7): 1636-1639.
- [82] Li J F, Luo H Y, Liu Y, et al. Modeling and optimization of cascaded erbium and holmium doped fluoride fiber lasers [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2013, 20(5): 15-28.
- [83] Aydın Y O, Fortin V, Maes F, et al. Diode-pumped mid-infrared fiber laser with 50% slope efficiency [J]. *Optica*, 2017, 4(2): 235-238.
- [84] Henneberger W C, Schulte H J. Optical pulses produced by laser length variation [J]. *Journal of Applied Physics*, 1966, 37(5): 2189.
- [85] Porta J, Grudinin A B, Chen Z J, et al. Environmentally stable picosecond ytterbium fiber laser with a broad tuning range [J]. *Optics Letters*, 1998, 23(8): 615-617.
- [86] Heidt A M, Burger J P, Maran J N, et al. High power and high energy ultrashort pulse generation with a frequency shifted feedback fiber laser [J]. *Optics Express*, 2007, 15(24): 15892-15897.
- [87] Sousa J M, Okhotnikov O G. Short pulse generation and control in Er-doped frequency-shifted-feedback fibre lasers [J]. *Optics Communications*, 2000, 183(1/2/3/4): 227-241.
- [88] Vazquez-Zuniga L A, Jeong Y. Study of a mode-locked erbium-doped frequency-shifted-feedback fiber laser incorporating a broad bandpass filter: numerical results [J]. *Optics Communications*, 2014, 322: 54-60.
- [89] Chen H, Chen S P, Jiang Z F, et al. Diversified pulse generation from frequency shifted feedback Tm-doped fibre lasers [J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 26431.
- [90] Woodward R I, Majewski M R, Jackson S D. Mode-locked dysprosium fiber laser: picosecond pulse generation from 2.97 to 3.30 μm [J]. *APL Photonics*, 2018, 3(11): 116106.
- [91] Majewski M R, Woodward R I, Jackson S D. Ultrafast mid-infrared fiber laser mode-locked using frequency-shifted feedback [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(7): 1698-1701.
- [92] Pawliszewska M, Majewski M R, Jackson S D. Electronically tunable picosecond pulse generation from Ho^{3+} -doped fluoride fiber laser using frequency-shifted feedback [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(20): 5808-5811.
- [93] Henderson-Sapir O, Bawden N, Majewski M R, et al. Mode-locked and tunable fiber laser at the 3.5 μm band using frequency-shifted feedback [J]. *Optics Letters*, 2019, 45(1): 224-227.
- [94] Majewski M R, Pawliszewska M, Jackson S D. Picosecond pulse formation in the presence of atmospheric absorption [J]. *Optics Express*, 2021, 29(12): 19159-19169.
- [95] Sabert H, Brinkmeyer E. Pulse generation in fiber lasers with frequency shifted feedback [J]. *Journal of Lightwave Technology*, 1994, 12(8): 1360-1368.

Progress on Mid-Infrared Mode-Locked Fluoride Fiber Lasers

Luo Hongyu, Li Jianfeng*

State Key Laboratory of Electronic Thin Films and Integrated Devices, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu, Sichuan 610054, China

Abstract

Significance The mid-infrared spectral region of 2.5–20 μm has attracted tremendous scientific and technological interest. It not only covers two atmospheric transmission windows of 3–5 μm and 8–13 μm , but also contains strong characteristic vibrational transitions of many important molecules, which makes it quite promising for applications in spectroscopy, materials processing, chemical, and biomolecular sensing, security, and industry. Specifically, the ultrashort pulses, with a time scale of fs to ps, in this band have found direct demands in laser surgery, polymer processing, harmonic generation, strong-field physics, ultrafast imaging, etc, owing to their superior performance. Mode-locking based on temporal coherent superposition, as a robust and compact way of producing ultrashort pulses, has been developed for several decades. In this century, the advanced diode-pumped fiber lasers with a compact and cost-effective design have provided an ideal platform for mode-locked ultrashort pulses generation. Until now, there are many reports on the mode-locked lasers based on the mature silica fiber in the near-infrared region of 1–2 μm , and some of them have been even developed to commercial products. However, such silica fiber cannot render good service in the mid-infrared, because it will exhibit a significantly increased loss at $>2.2 \mu\text{m}$ while quenching the mid-infrared transitions of the doped rare-earth ions, due to the high phonon energy of 1100 cm^{-1} . As an alternative, the low-phonon-energy ($500\text{--}600 \text{ cm}^{-1}$) fluoride fiber with the excellent dopant capability, high mechanical strength, and reliable chemical stability has become the most popular mid-infrared medium. Different rare-earth ions (mainly including Er^{3+} , Ho^{3+} , and Dy^{3+}) have also been doped into fluoride fibers to enable mid-infrared laser production at 2.7–4 μm (Table 1), providing the opportunity for mode-locking formation, hence becoming the hot research topic in the recent decade.

Progress So far, three main mode-locking mechanisms, i. e., material saturable absorption (MSA), nonlinear polarization rotation (NPR), and frequency shifted feedback (FSF) have been exploited in the mid-infrared, among which the MSA mode-locking technique is the pioneer. In 2012, Li et al. used a commercial semiconductor saturable absorber (SESAM) to present a mode-locked $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ co-doped fluoride fiber laser at 2.87 μm , yielding a pulse width of 24 ps, and a repetition rate of 27.1 MHz (Fig. 3). This marks the first mode-locked fluoride fiber laser in the mid-infrared. After that, different saturable absorbers (e. g., InAs, graphene, topological insulator, black phosphorus, carbon nanotube) were introduced into Er^{3+} - and Ho^{3+} -doped fluoride fiber lasers to demonstrate mode-locking in the spectral region of 2.7–3.5 μm . However, all operated at the ps time scale, limited by the water vapor window and SA performance, where the shortest pulse width measured is 6 ps, reported by Hu et al. using an InAs mode-locked $\text{Ho}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ co-doped fluoride fiber ring cavity at 2.86 μm [Fig. 4(a)]. Until 2015, the NPR technique was moved to the mid-infrared, where Duval et al. presented the first NPR soliton mode-locked Er^{3+} -doped fluoride fiber ring oscillator at 2.8 μm , thus pushing the pulse width towards the fs scale (i. e., 207 fs), for the first time (Fig. 7). After that, a multitude of efforts have made on improving the mode-locking performances, e. g., pulse narrowing, power/energy scaling, wavelength extension. One of the impressive results is that completed by Huang et al., where the recorded sub-two-cycle pulse width of 15.9 fs with a peak power of 500 kW were produced through the external amplification and nonlinear compression seeded by a dispersion-management NPR mode-locked Er^{3+} -doped fluoride fiber ring oscillator at 2.8 μm [Fig. 8(a)]. Recently, the wavelength of fs soliton pulses was extended to the 3.5 μm band using a NPR mode-locked dual-wavelength pumped Er^{3+} -doped fluoride fiber ring cavity [Fig. 8(c)]. In 2018, Woodward et al. firstly introduced the FSF mechanism by an acousto-optic tunable filter (AOTF) into a Dy^{3+} -doped ZBLAN fiber laser. The achieved ps mode-locked pulse could be tuned from 2.97 to 3.30 μm (Fig. 10), representing the current broadest level of mode-locked fiber lasers at any wavelengths. Subsequently, the compact AOTF was also applied in Er^{3+} - and Ho^{3+} -doped fluoride fiber lasers to enable tunable ps pulses in the sub-region of 2.7–3.6 μm . To circumvent the issue of bandwidth limitation from either AOTF or water vapor windows, Majewski et al. used an acousto-optic modulator (AOM) instead to establish an FSF mode-locked Dy^{3+} -doped fluoride fiber laser at the wavelength of beyond 3 μm . The soliton operation with an estimated pulse

width of 825 fs was obtained.

Conclusions and Prospects The past decade has seen great progress of mid-infrared mode-locked fluoride fiber lasers, enabling a range of new applications. Different mechanisms, e. g., MSA, NPR, and FSF, have been introduced into rare-earth ions doped fluoride fiber lasers to demonstrate mode-locked operations in the spectral region of 2.7–3.6 μm and with the time scale of 10 s of fs to ps. However, most of these systems involve some local free-space alignments, weakening the stability, reliability and compactness while preventing pulse narrowing and soliton formation especially at the strong water vapor absorption band. Thus the development towards a robust all-fiber structure is undoubtedly the trend in the future. In addition, the performance parameters of the mode-locked fiber lasers in the mid-infrared fall far short of that in the near-infrared, which needs to be improved by employing new mode-locking techniques and designs. Parallel to the mid-infrared continuous wave fluoride fiber lasers, further extending the wavelength of mode-locked pulses is also an important direction.

Key words fiber optics; fiber lasers; mid-infrared lasers; fluoride fiber; ultrashort pulse; mode-locking