

## 基于差频技术的宽谱中红外飞秒激光的产生

冯玺, 张兆伟\*

华中科技大学光学与电子信息学院, 湖北 武汉 430074

**摘要** 飞秒差频产生器(DFG)是一种获得宽谱中红外激光的有力工具。为了利用 DFG 产生更高瞬时带宽的中红外激光,可以使用窄带泵浦光、宽带信号光结合大信号光相位匹配带宽的非线性晶体或使用宽带泵浦光、窄带信号光结合大泵浦接受带宽的非线性晶体。研究表明,对于 PPLN 晶体,当泵浦光波长为 1050 nm,闲频光波长在 3.4  $\mu\text{m}$  附近时,非线性晶体具有较大的泵浦接受带宽,仅使用均匀极化周期 PPLN 晶体即可获得宽谱中红外激光。基于高重复频率的掺镱光纤激光放大器系统,通过引入自相位调制效应,获得了中心波长为 1050 nm 的宽谱光源,将其作为 DFG 系统的泵浦源。利用飞秒脉冲在负色散光子晶体光纤中的拉曼效应,产生了中心波长为 1525 nm 的超短脉冲,将其作为 DFG 系统的信号源。在长度分别为 1 mm 和 3 mm 的 PPLN 晶体中,都获得了宽谱中红外闲频光输出,其-10 dB 光谱覆盖范围分别为 2.72~4.15  $\mu\text{m}$  和 2.87~4.08  $\mu\text{m}$ 。

**关键词** 激光器; 差频产生器; 中红外激光; 宽带泵浦光; 光纤激光器

**中图分类号** O437 **文献标志码** A

**doi:** 10.3788/CJL202249.0101018

## 1 引言

绝大多数分子在 2~20  $\mu\text{m}$  中红外波段都有强烈的吸收峰,因而中红外波段被称为分子的光谱学指纹区<sup>[1]</sup>。宽谱中红外激光光源在多分子检测、光学相干层析成像、高光谱成像、纳米傅里叶红外光谱仪以及超短脉冲合成等领域有着广泛的应用<sup>[2-10]</sup>。利用飞秒光纤激光器作为泵浦源,基于差频产生器(DFG)可以产生具有一定带宽的中红外激光输出<sup>[11-13]</sup>。DFG 的光谱覆盖范围可通过波长调谐技术来扩展。例如,通过波长调谐,利用基于周期性极化铌酸锂(PPLN)晶体的飞秒差频产生器,可以产生 3~5  $\mu\text{m}$  的中红外激光<sup>[14]</sup>,利用基于硒化镓晶体的飞秒差频产生器,可以产生 7~18  $\mu\text{m}$  的中红外激光<sup>[15]</sup>。然而,通过波长调谐技术来获得更宽的光谱覆盖范围,既需要改变输入泵浦或信号光的波长,还需要同时改变非线性晶体的相位匹配波长,实现过程相对复杂。因此,研究如何利用 DFG 技术,在不使用波长调谐技术的条件下获得更大瞬时带宽的

中红外激光,具有重要的意义。

为了利用 DFG 技术产生更大瞬时带宽的中红外激光,一方面需要提高输入泵浦光或信号光的带宽,同时需要非线性晶体具有足够宽的参量增益带宽。使用少周期光脉冲作为泵浦源,并利用相对较短的非线性晶体,基于脉冲内的 DFG,可以产生具有极宽瞬时带宽的中红外激光<sup>[16-18]</sup>。2019 年, Wang 等<sup>[16]</sup>将平均功率为 3.35 W、中心波长为 2.3  $\mu\text{m}$ 、脉冲宽度为 28 fs 的超短脉冲入射到一块长度为 1.2 mm 的硒化镓(GaSe)晶体中,利用差频转换过程,获得了带宽为 2.7~17  $\mu\text{m}$  的中红外激光输出。脉冲内的 DFG 固然可以产生极宽宽带的中红外激光,但是其转化效率相对低,且对泵浦光的要求很高,一般需要使用少周期光脉冲。另外,脉冲内的 DFG 比较容易产生波长大于 5  $\mu\text{m}$  的中红外激光,而获得波长短于 5  $\mu\text{m}$  激光的难度相对较大。

与脉冲内的 DFG 相比,脉冲间的 DFG 需要两个同步的输入脉冲分别作为泵浦光和信号光<sup>[19-24]</sup>,但是对输入光脉冲宽度的要求相对较低。为了利用

收稿日期: 2021-08-31; 修回日期: 2021-09-26; 录用日期: 2021-09-30

基金项目: 中央高校基本科研业务费专项资金资助(2018KFYXKJC020)

通信作者: \*zhangzhaowei@hust.edu.cn

脉冲间的 DFG 获得宽谱闲频光输出,如图 1(a)所示,可以使用带宽相对较窄的光脉冲作为泵浦光,使用带宽较宽的光脉冲作为信号光,此时需要非线性晶体具备较大的信号光相位匹配带宽。近年来,本课题组利用级联 PPLN 晶体和啁啾极化 PPLN 晶体所提供的宽带参量增益,搭建了宽谱 DFG 系统,分别获得了光谱覆盖范围为  $2.8 \sim 3.9 \mu\text{m}^{[23]}$  和  $1.9 \sim 4.6 \mu\text{m}^{[24]}$  的宽谱中红外闲频光输出。

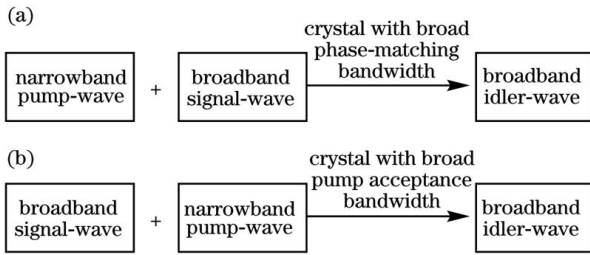


图 1 利用 DFG 产生宽谱闲频光的技术路径。(a)基于窄带泵浦光、宽带信号光以及具备较大信号光相位匹配带宽的晶体;(b)基于宽带泵浦光、窄带信号光以及具备较大泵浦接受带宽的晶体

Fig. 1 Technical routes for generating broadband idler-waves based on DFGs. (a) Using narrowband pump-wave, broadband signal-wave, and crystal with broad signal phase-matching bandwidth; (b) using broadband pump-wave, narrowband signal-wave, and crystal with broad pump acceptance bandwidth

另一方面,为了利用脉冲间的 DFG 获得宽谱闲频光输出,也可以使用带宽相对较宽的光脉冲作为泵浦光,使用带宽较窄的光脉冲作为信号光,此时需要非线性晶体具备较大的泵浦接受带宽[图 1(b)]。研究表明,当使用  $1 \mu\text{m}$  飞秒掺镱光纤激光系统作为飞秒 DFG 的泵浦源时,仅使用均匀 PPLN 作为非线性晶体即可获得较大的泵浦接受带宽,因而能够支持宽谱闲频光的产生。在实验方面,我们利用中心波长为  $1050 \text{ nm}$  的宽谱飞秒激光作为泵浦光、中心波长为  $1525 \text{ nm}$  的窄带飞秒激光作为信号光,利用  $1 \text{ mm}$  和  $3 \text{ mm}$  长度的 PPLN 作为非线性晶体,都获得了宽谱中红外闲频光输出,其中  $1 \text{ mm}$  PPLN 所获的红外激光的  $-10 \text{ dB}$  瞬时光谱覆盖范围为  $2.72 \sim 4.15 \mu\text{m}$ 。

## 2 基本原理

### 2.1 非线性晶体的信号光相位匹配带宽与泵浦接受带宽

为了讨论非线性晶体的参量增益带宽,在固定

泵浦光波长时,将能够获得较大参量增益的信号光带宽定义为信号光相位匹配带宽;在固定信号光波长时,将能够获得较大参量增益的泵浦光带宽定义为泵浦接受带宽。

高效率的差频产生需要同时满足相位匹配和能量守恒两个条件,其中能量守恒可以表示为  $\omega_s + \omega_i = \omega_p$ ,其中  $\omega$  表示角频率,下标 s,i,p 分别表示信号、闲频、泵浦光。可见,入射的泵浦和信号光的带宽限定了可以产生的闲频光的光谱范围。在共线相位匹配情况下,相位失配量  $\Delta k$  表示为  $\Delta k = k_s + k_i - k_p$ ,其中光波波矢大小  $k_x = n_x \omega_x / c$ ,  $n_x$  为折射率,  $c$  为真空中的光速,  $x = s, i, p$ 。相位失配影响差频产生过程的效率,即相位匹配效率,可表示为  $P = [\sin c(0.5\Delta kL)]^2$ ,其中  $L$  为非线性晶体的长度。可见,当  $\Delta k = 0$  时,相位匹配效率最高。设泵浦光角频率为  $\omega_{p0}$ ,信号光角频率为  $\omega_{s0}$  时,则产生的闲频光角频率为  $\omega_{p0} - \omega_{s0}$ ,此时  $\Delta k = 0$ 。当泵浦光角频率保持不变,信号光的角频率变为  $\omega_{s0} + \Delta\omega$  时,相应的相位失配量<sup>[25]</sup>为

$$\Delta k \approx \left( \frac{1}{v_{gi0}} - \frac{1}{v_{gs0}} \right) \times \Delta\omega, \quad (1)$$

式中:  $v_{gi0}$  和  $v_{gs0}$  分别表示角频率为  $\omega_{p0} - \omega_{s0}$  的闲频光的群速度和角频率为  $\omega_{s0}$  的泵浦光的群速度。可以看出,信号和闲频光的群速度差越小,在有限信号光带宽内的相位失配量也越小,相应的相位匹配效率下降得也越少,此时的信号光相位匹配带宽也越宽。

同理,当信号光角频率保持不变,泵浦光的角频率变化  $\omega_{p0} + \Delta\omega$  时,相应的相位失配量为

$$\Delta k \approx \left( \frac{1}{v_{gp0}} - \frac{1}{v_{gi0}} \right) \times \Delta\omega, \quad (2)$$

式中:  $v_{gp0}$  表示角频率为  $\omega_{p0}$  的泵浦光的群速度。泵浦光和闲频光的群速度差越小,有限泵浦光带宽内的相位失配量也越小,相应的相位匹配效率下降得也越少,此时的泵浦接受带宽也越宽。

### 2.2 PPLN 晶体的信号光相位匹配带宽与泵浦接受带宽

如前所述,泵浦、信号和闲频光的相对群速度是决定泵浦接受带宽的关键因素。晶体中传输的光波的群速度  $v_g$  表示为

$$v_g = \frac{c}{n - \frac{dn}{d\lambda}}, \quad (3)$$

式中:  $n$  表示光波在晶体中的折射率;  $\lambda$  表示光波

长;  $\frac{dn}{d\lambda}$  表示折射率对波长求导。图 2 中展示了不同波长的光波在 PPLN 晶体中的群速度。可见, 当泵浦光波长为 1050 nm, 闲频光波长在 3.4  $\mu\text{m}$  附近时, 泵浦光与闲频光的群速度差较小, 此时参量转换过程具有较大的泵浦接受带宽。另外, 当泵浦光波长为 1050 nm, 信号与闲频光仅在简并波长(即信号与闲频光波长均为 2100 nm)附近的群速度接近, 即拥有较大的信号光相位匹配带宽。反之, 当泵浦波长为 1050 nm, 信号光波长为 1520 nm(对应的闲频光波长为 3.4  $\mu\text{m}$ )时, 信号与闲频光有较大的时延, 因而信号光的相位匹配带宽也相对较窄。此时, 为了提高信号光相位匹配带宽, 一般需要采用级联或啁啾晶体<sup>[23-24]</sup>。

当泵浦光波长为 1050 nm, 信号光中心波长为 1520 nm 时, 在极化周期为 30  $\mu\text{m}$ 、长度为 1 mm 的 PPLN 晶体中, 信号和闲频光的相位匹配效率曲线分别如图 3(a)、(b)所示。当信号光波长为 1520 nm,

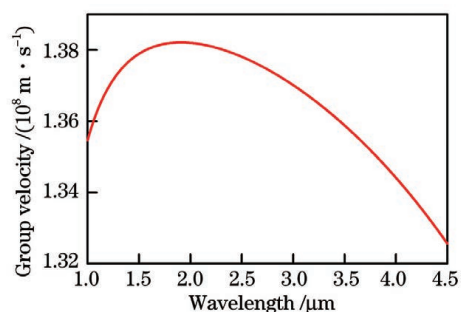


图 2 不同波长的光波在 PPLN 晶体中的群速度

Fig. 2 Group velocity in PPLN crystal versus wavelength 泵浦中心波长为 1050 nm 时, 在极化周期为 30  $\mu\text{m}$ 、长度为 1 mm 的 PPLN 晶体中, 泵浦光和闲频光的相位匹配效率分别如图 3(c)、(d)所示。可见, 对于极化周期为 30  $\mu\text{m}$ 、长度为 1 mm 的 PPLN 晶体, 泵浦接受带宽明显宽于信号光相位匹配带宽。因而对于 DFG 系统, 若采用一个宽带泵浦光源, 仅使用均匀极化周期的 PPLN 晶体即可实现宽谱中红外闲频光的产生。

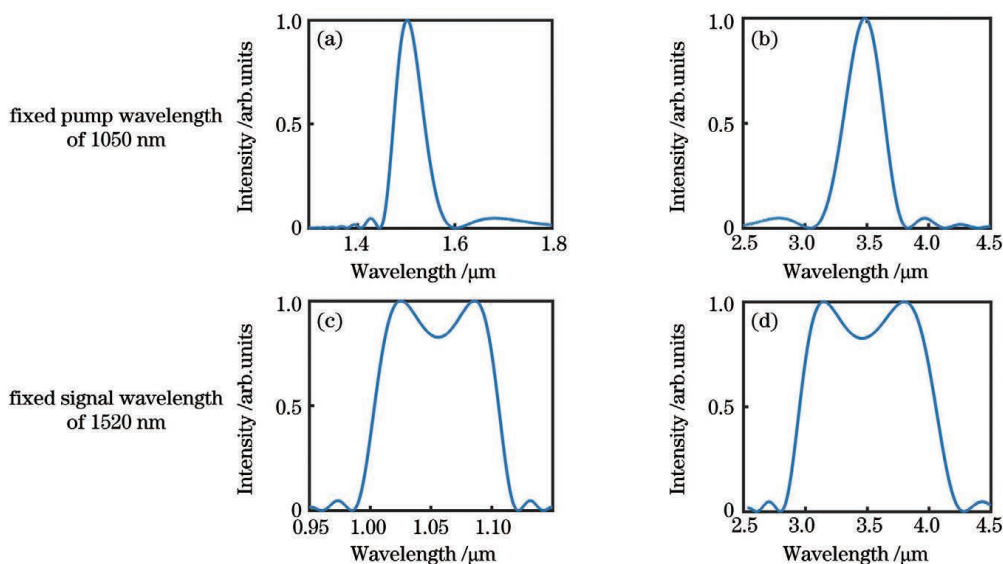


图 3 极化周期为 30  $\mu\text{m}$ 、长度为 1 mm 的 PPLN 晶体的相位匹配效率曲线。(a)信号光;(b)(d)闲频光;(c)泵浦光

Fig. 3 Phase-matching efficiency curves for 1-mm-long PPLN crystal with poling period of 30  $\mu\text{m}$ . (a) Signal wave; (b) (d) idler wave; (c) pump wave

### 3 分析与讨论

#### 3.1 DFG 系统的实验装置

在实验方面, 我们设计并搭建了一个基于掺镱光纤的锁模激光器及放大器系统, 将其作为 DFG 的泵浦源。如图 4 所示, 泵浦源系统的输出特性为: 脉冲重复频率 91.3 MHz, 中心波长 1.05  $\mu\text{m}$ , 平均功率 4.1 W, 脉冲宽度 203 fs。

泵浦输出脉冲通过一个焦距为 8 mm 的非球面

镜耦合到一段 6 cm 长的 PM980 光纤中, 耦合效率为 72%, 高峰值功率的输入脉冲在光纤中由于 SPM 效应获得了极大的光谱展宽, 然后通过一个焦距为 8 mm 的非球面镜耦合输出。光纤之前的半波片的作用是调整入射脉冲的偏振态, 使得脉冲可以在光纤的慢轴中传播, 光纤之后的半波片则是为了让输出脉冲的偏振态呈水平偏振。之后, 利用一对 SF57 棱镜将其压缩, 棱镜对的压缩效率为 68%, 由于我们使用的棱镜并不是为 1.05  $\mu\text{m}$  光波设计的, 因此

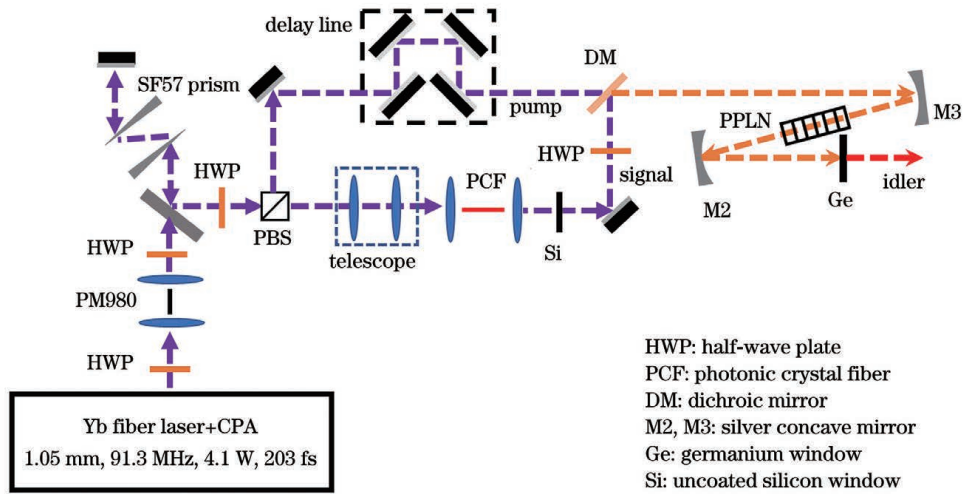


图 4 中红外差频产生器的实验装置图

Fig. 4 Experimental setup of mid-infrared DFG system

棱镜对的压缩效率相对较低。压缩之后的脉冲时域的半峰全宽为 35 fs, 平均功率为 2 W, 中心波长为 1050 nm, -10 dB 光谱覆盖范围为 1~1.1  $\mu\text{m}$ , 其光谱和干涉自相关曲线分别如图 5(a)、(c) 所示。利用偏振光分束器(PBS)将产生的超短脉冲分为两路。一路作为 DFG 的泵浦光, 在进入 PPLN 晶体之前的平均功率为 720 mW。另外一路通过一个焦距为 8 mm 的非球面镜耦合到一段 10 cm 长的负色散光子晶体光纤(PCF)中, 耦合效率约为 58%, PCF

的非线性系数为  $11 \text{ W}^{-1} \cdot \text{km}^{-1}$ , 零色散波长在 1000 nm 附近, 经另外一个焦距为 8 mm 的非球面镜输出, 输出光功率为 590 mW。然后, 输出光经过一个 1 mm 厚的未镀膜的硅窗(硅窗对 1.1  $\mu\text{m}$  以下的光波具有强吸收), 未吸收光脉冲作为 DFG 系统的信号光, 其光谱和干涉自相关曲线分别如图 5(b)、(d) 所示, 其中中心波长为 1.525  $\mu\text{m}$ , -10 dB 光谱覆盖范围为 1.47~1.6  $\mu\text{m}$ , 在进入晶体之前的平均功率为 84 mW, 脉冲时域的半峰全宽为 67 fs。

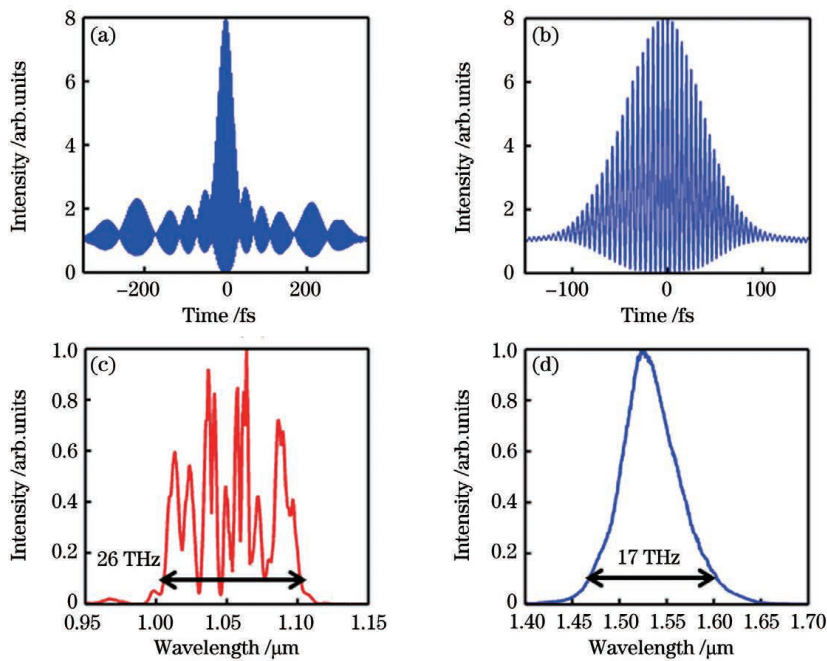


图 5 实验测得的干涉自相关曲线和入射光的光谱。(a) 泵浦脉冲的干涉自相关曲线; (b) 信号脉冲的干涉自相关曲线; (c) 泵浦光光谱; (d) 信号光光谱

Fig. 5 Measured interferometric autocorrelation traces and spectra of incident waves. (a) Interferometric autocorrelation trace of pump pulse; (b) interferometric autocorrelation trace of signal pulse; (c) spectrum of pump wave; (d) spectrum of signal wave

可见,泵浦光谱范围与信号光谱范围相当。信号光来源于拉曼孤子,因此其具有光滑的光谱。

泵浦光的偏振方向平行于实验平台,由于实验中使用的 PCF 为非保偏光纤,通过半波片将滤波之后所获的信号光的偏振态调整至水平方向。泵浦光和信号光经二向色镜合束之后通过一个焦距为 50 mm 的凹面镜聚焦于 PPLN 晶体上。经过估算,两束光在晶体中的光斑束腰大约为 25  $\mu\text{m}$ 。在这里,PPLN 晶体采用  $e+e\rightarrow e$  的相位匹配模式,其中  $e$  表示三个光波的偏振态。两个光的相对时延被位于泵浦光路的时延线控制,时延的调节依赖一个高精度的电动步进马达。从 PPLN 晶体输出的光经过一个凹面镜实现准直,然后通过厚度为 3 mm 的锗窗,以吸收残余的泵浦与信号光,获得闲频光输出。

### 3.2 实验结果分析

基于以上的 DFG 系统,我们研究了使用不同长度和极化周期的 PPLN 晶体的情况。图 6 展示了

我们得到的中红外闲频光谱,其中  $\Lambda$  为 PPLN 晶体的极化周期。当晶体长度为 1 mm,极化周期分别为 29.5, 30, 30.5  $\mu\text{m}$  时,所产生的闲频光的 -10 dB 光谱覆盖范围分别为 2.72~4.15  $\mu\text{m}$ 、2.77~3.97  $\mu\text{m}$ 、2.82~3.82  $\mu\text{m}$ ,对应的闲频光的平均功率分别为 7.5,15,13.6 mW。当晶体长度为 3 mm,极化周期为 29.5,30,30.5  $\mu\text{m}$  时,所产生的闲频光的 -10 dB 光谱覆盖范围分别为 2.87~4.08  $\mu\text{m}$ 、2.77~3.9  $\mu\text{m}$ 、3~3.75  $\mu\text{m}$ ,对应的平均功率分别为 23,45,39 mW。可见,通过增加晶体的长度,DFG 的转换效率得到了显著的提高,同时产生的中红外激光的带宽有所减小,原因是晶体长度的增加使得晶体的泵浦光接受带宽减小。此外,在较短的时间(小于 30 s)范围内,我们的 DFG 系统产生的中红外激光具有较高的稳定性,但受制于系统中光纤耦合的稳定性以及泵浦光和信号光相对时延的稳定性,其长期稳定性较差。

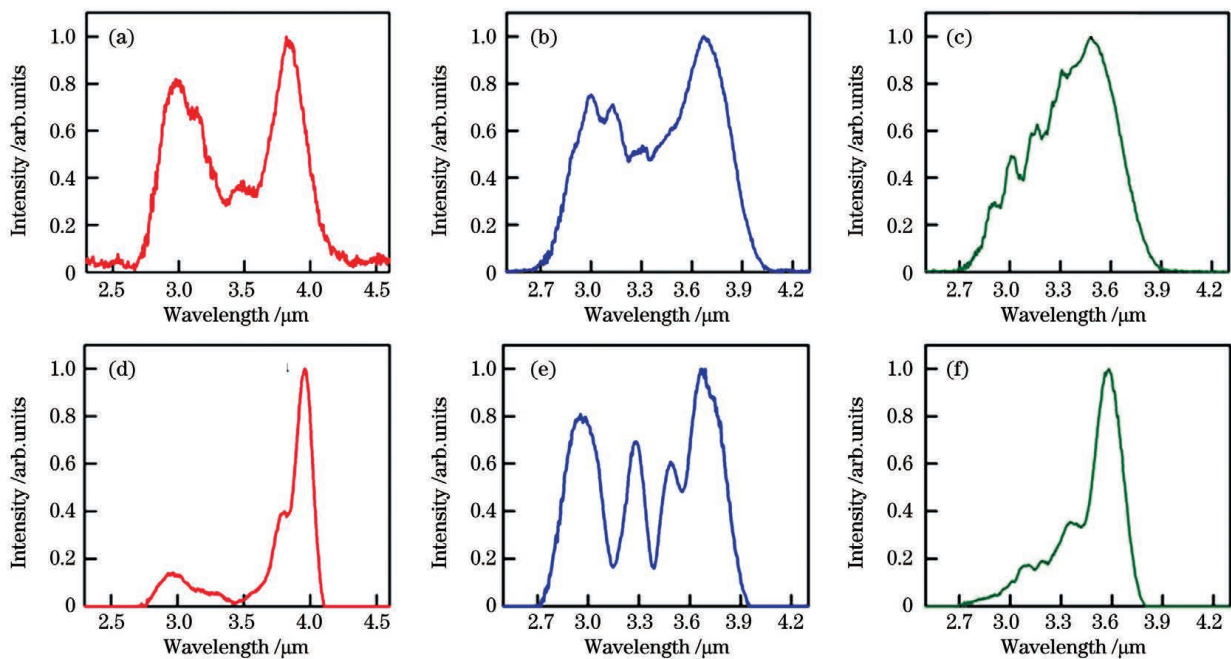


图 6 实验测得的不同条件下 DFG 输出的闲频光谱。(a)  $\Lambda = 29.5 \mu\text{m}$ ,  $L = 1 \text{ mm}$ ; (b)  $\Lambda = 30 \mu\text{m}$ ,  $L = 1 \text{ mm}$ ;  
(c)  $\Lambda = 30.5 \mu\text{m}$ ,  $L = 1 \text{ mm}$ ; (d)  $\Lambda = 29.5 \mu\text{m}$ ,  $L = 3 \text{ mm}$ ; (e)  $\Lambda = 30 \mu\text{m}$ ,  $L = 3 \text{ mm}$ ; (f)  $\Lambda = 30.5 \mu\text{m}$ ,  $L = 3 \text{ mm}$

Fig. 6 Experimentally measured spectra of idler waves generated from DFGs under different conditions. (a)  $\Lambda = 29.5 \mu\text{m}$ ,  $L = 1 \text{ mm}$ ; (b)  $\Lambda = 30 \mu\text{m}$ ,  $L = 1 \text{ mm}$ ; (c)  $\Lambda = 30.5 \mu\text{m}$ ,  $L = 1 \text{ mm}$ ; (d)  $\Lambda = 29.5 \mu\text{m}$ ,  $L = 3 \text{ mm}$ ; (e)  $\Lambda = 30 \mu\text{m}$ ,  $L = 3 \text{ mm}$ ; (f)  $\Lambda = 30.5 \mu\text{m}$ ,  $L = 3 \text{ mm}$

2013 年, Zhu 等<sup>[26]</sup> 利用基于 PPLN 晶体的 DFG 获得了光谱范围为 2.9~3.6  $\mu\text{m}$  的中红外激光。2015 年, Cruz 等<sup>[21]</sup> 利用基于 3 mm 长的 PPLN 的 DFG 系统获得了光谱范围为 2.8~3.5  $\mu\text{m}$  的中红外激光。与这些传统的基于均匀极化周期 PPLN 晶体的 DFG 系统相比,我们使用了

具有更宽谱宽的脉冲作为 DFG 的泵浦光,从 DFG 系统获得的中红外闲频光的谱宽明显增加。2020 年,本课题组利用基于级联 PPLN 晶体的 DFG,获得了光谱覆盖范围为 2.8~3.9  $\mu\text{m}$  的中红外激光<sup>[23]</sup>。与本课题组此前利用级联 PPLN 所搭建的 DFG 系统相比,本实验仅需使用单块均匀极化周期

的 PPLN, 即可获得具有更宽谱宽的中红外闲频光输出。此外, 均匀极化周期 PPLN 晶体不需要定制, 相较于基于 APPLN 晶体或者级联 PPLN 晶体的 DFG 系统, 基于均匀极化周期 PPLN 的 DFG 系统具有更高的性价比和简单的结构。

### 3.3 仿真分析

我们基于三波耦合方程对 DFG 实验系统进行了仿真。具体仿真参数如下: PPLN 晶体长度为 1 mm, 极化周期为 30  $\mu\text{m}$ , 泵浦光和信号光光强分

别为 1  $\text{GW}/\text{cm}^2$  和 0.6  $\text{GW}/\text{cm}^2$ , 脉冲时域为高斯型分布。泵浦光脉冲时域的半峰全宽为 35 fs, 中心波长为 1050 nm, 光谱如图 7(a) 所示。信号光脉冲时域的半峰全宽为 67 fs, 中心波长为 1525 nm, 光谱如图 7(b) 所示。图 7(c) 展示了 DFG 产生的闲频光的光谱。可以看出, 仿真产生的闲频光的带宽与实验结果相近, 由于 PPLN 在相应波长处具备较大的泵浦接受带宽, 利用宽谱脉冲来泵浦 DFG 系统, 可以获得宽谱闲频光输出。

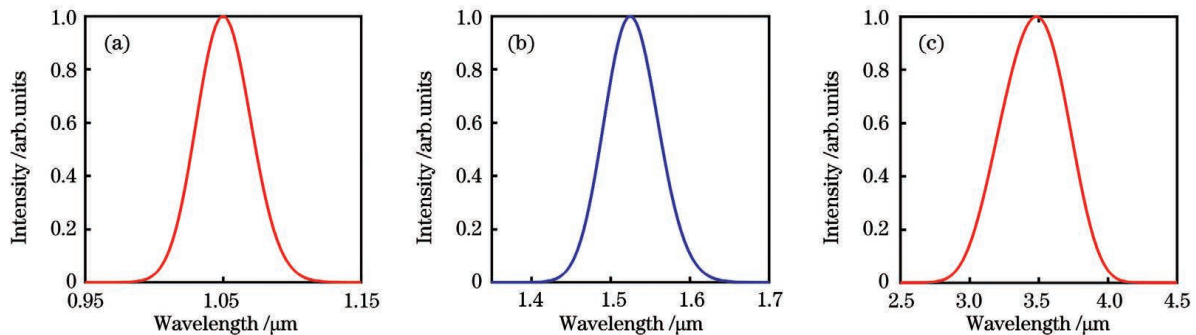


图 7 入射光光谱及 DFG 产生的闲频光光谱。(a) 入射泵浦光光谱; (b) 入射信号光光谱; (c) DFG 产生的闲频光的光谱  
Fig. 7 Spectra of incident waves and idler wave generated from DFG. (a) Spectrum of incident pump wave; (b) spectrum of incident signal wave; (c) spectrum of idler wave generated from DFG

## 4 结 论

理论分析表明, 对于 PPLN 晶体, 当泵浦光波长为 1050 nm, 闲频光波长在 3.4  $\mu\text{m}$  附近时, 泵浦光与闲频光的群速度差较小; 此时, 非线性晶体具有较大的泵浦接受带宽, 仅使用均匀极化周期的 PPLN 晶体即可获得宽谱中红外激光输出。在实验方面, 基于高重复频率的掺镱光纤激光放大器系统, 通过引入自相位调制效应, 获得了中心波长为 1050 nm 的宽谱光源, 将其作为 DFG 的泵浦源; 通过飞秒脉冲在负色散光子晶体光纤中的拉曼效应, 产生了中心波长为 1525 nm 的超短脉冲, 将其作为 DFG 系统的信号源。利用长度分别为 1 mm 和 3 mm 的 PPLN 晶体, 都获得了宽谱中红外闲频光输出, 其 -10 dB 光谱覆盖范围分别为 2.72 ~ 4.15  $\mu\text{m}$  和 2.87 ~ 4.08  $\mu\text{m}$ 。所获得的宽谱中红外光源在多分子检测、傅里叶红外光谱测量以及超短脉冲合成等领域有很好的应用前景。

### 参 考 文 献

[1] Schliesser A, Picqué N, Hänsch T W. Mid-infrared frequency combs[J]. *Nature Photonics*, 2012, 6(7): 440-449.  
[2] Junaid S, Tomko J, Semtsiv M P, et al. Mid-

infrared upconversion based hyperspectral imaging [J]. *Optics Express*, 2018, 26(3): 2203-2211.

- [3] Badon A, Li D, Lerosey G, et al. Smart optical coherence tomography for ultra-deep imaging through highly scattering media[J]. *Science Advances*, 2016, 2(11): e1600370.  
[4] Sugawara S, Nakayama Y, Taniguchi H, et al. Wide-field mid-infrared hyperspectral imaging of adhesives using a bolometer camera [J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1): 12395.  
[5] Huth F, Govyadinov A, Amarie S, et al. Nano-FTIR absorption spectroscopy of molecular fingerprints at 20 nm spatial resolution [J]. *Nano Letters*, 2012, 12(8): 3973-3978.  
[6] Timmers H, Kowligy A, Lind A, et al. Molecular fingerprinting with bright, broadband infrared frequency combs[J]. *Optica*, 2018, 5(6): 727-732.  
[7] Liang H K, Krogen P, Wang Z, et al. High-energy mid-infrared sub-cycle pulse synthesis from a parametric amplifier [J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 141.  
[8] Ning C X, Zhang Z W. Cavity-length detuning of mid-infrared femtosecond doubly resonant optical parametric oscillators (Invited) [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2021, 50(8): 20210341.  
宁城泉, 张兆伟. 中红外飞秒双谐振光参量振荡器的腔长调谐(特邀)[J]. *红外与激光工程*, 2021, 50

- (8): 20210341.
- [9] Hu M L, Wang J, Fan J T. Research progress on fiber laser-pumped femtosecond optical parametric oscillators[J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(19): 1901001.  
胡明列, 王珏, 范锦涛. 光纤激光器泵浦的飞秒光学参量振荡器研究进展[J]. 中国激光, 2021, 48(19): 1901001.
- [10] Liu Y, Cao Q, Diao X C, et al. Longwave mid-IR femtosecond pulse sources driven by ultrafast fiber lasers(Invited)[J]. Infrared and Laser Engineering, 2021, 50(8): 20210368.  
刘洋, 曹前, 刁新财, 等. 超快光纤激光驱动的长波中红外飞秒脉冲光源(特邀)[J]. 红外与激光工程, 2021, 50(8): 20210368.
- [11] Jin L, Yamanaka M, Sonnenschein V, et al. Highly coherent tunable mid-infrared frequency comb pumped by supercontinuum at  $1\ \mu\text{m}$  [J]. Applied Physics Express, 2017, 10(1): 012503.
- [12] Neely T W, Johnson T A, Diddams S A. High-power broadband laser source tunable from  $3.0\ \mu\text{m}$  to  $4.4\ \mu\text{m}$  based on a femtosecond Yb: fiber oscillator [J]. Optics Letters, 2011, 36(20): 4020-4022.
- [13] Steinle T, Mörz F, Steinmann A, et al. Ultra-stable high average power femtosecond laser system tunable from  $1.33\ \mu\text{m}$  to  $20\ \mu\text{m}$  [J]. Optics Letters, 2016, 41(21): 4863-4866.
- [14] Maser D L, Ycas G, Depetri W I, et al. Coherent frequency combs for spectroscopy across the  $3\text{--}5\ \mu\text{m}$  region [J]. Applied Physics B, 2017, 123(5): 1-9.
- [15] Zhou G, Cao Q, Kärtner F X, et al. Energy scalable, offset-free ultrafast mid-infrared source harnessing self-phase-modulation-enabled spectral selection [J]. Optics Letters, 2018, 43(12): 2953-2956.
- [16] Wang Q, Zhang J, Kessel A, et al. Broadband mid-infrared coverage ( $2\text{--}17\ \mu\text{m}$ ) with few-cycle pulses via cascaded parametric processes [J]. Optics Letters, 2019, 44(10): 2566-2569.
- [17] Liu K, Liang H K, Qu S Z, et al. High-energy mid-infrared intrapulse difference-frequency generation with 5.3% conversion efficiency driven at  $3\ \mu\text{m}$  [J]. Optics Express, 2019, 27(26): 37706-37713.
- [18] Elu U, Maidment L, Vamos L, et al. Seven-octave high-brightness and carrier-envelope-phase-stable light source [J]. Nature Photonics, 2021, 15(4): 277-280.
- [19] Ycas G, Giorgetta F R, Baumann E, et al. High-coherence mid-infrared dual-comb spectroscopy spanning  $2.6\ \mu\text{m}$  to  $5.2\ \mu\text{m}$  [J]. Nature Photonics, 2018, 12(4): 202-208.
- [20] Yao Y, Knox W H. Difference frequency generation of femtosecond mid infrared pulses employing intense Stokes pulses excitation in a photonic crystal fiber [J]. Optics Express, 2012, 20(23): 25275-25283.
- [21] Cruz F C, Maser D L, Johnson T, et al. Mid-infrared optical frequency combs based on difference frequency generation for molecular spectroscopy [J]. Optics Express, 2015, 23(20): 26814-26824.
- [22] Meek S A, Poisson A, Guelachvili G, et al. Fourier transform spectroscopy around  $3\ \mu\text{m}$  with a broad difference frequency comb [J]. Applied Physics B, 2014, 114(4): 573-578.
- [23] Feng X, Shi J Q, Liu P, et al. Broadband mid-infrared coherent light source from fiber-laser-pumped difference frequency generators based on cascaded crystals [J]. Optics Express, 2020, 28(10): 14310-14318.
- [24] Feng X, Liu F, Ning C X, et al. Broadband mid-IR light sources from difference frequency generators based on a 2-mm-long aperiodically-poled lithium-niobate crystal [J]. IEEE Photonics Journal, 2021, 13(4): 1-5.
- [25] Cerullo G, de Silvestri S. Ultrafast optical parametric amplifiers [J]. Review of Scientific Instruments, 2003, 74(1): 1-18.
- [26] Zhu F, Hundertmark H, Kolomenskii A A, et al. High-power mid-infrared frequency comb source based on a femtosecond Er: fiber oscillator [J]. Optics Letters, 2013, 38(13): 2360-2362.

# Broadband Mid-Infrared Light Based on Difference Frequency Generators

Feng Xi, Zhang Zhaowei\*

*School of Optical & Electronic Information, Huazhong University of Science & Technology, Wuhan, Hubei 430074, China*

## Abstract

**Objective** A difference frequency generator (DFG) is the frequently used platform to generate mid-infrared light. Two conditions need to be met to generate the broadband mid-infrared light without wavelength tuning. Firstly, the phase-matching bandwidth of the nonlinear crystal is wide. Second, the DFG needs to be pumped by a broadband light source. In a traditional DFG, the pump source is narrowband and the signal source is broadband. However, broadband signal waves centering at some special wavelengths are difficult to be obtained. In this paper, however we find that a DFG pumped by a broadband pump source and a narrowband signal source can generate broadband mid-infrared light in some special conditions.

**Methods** A periodically-poled lithium niobate (PPLN) based DFG is investigated. Firstly, we derive the relationship between phase mismatching and the group velocities of the pump wave, signal wave, and idler wave. We find that when the wavelength of the signal wave is constant, if the group velocity difference between the pump wave and the generated idler wave is small, the pump acceptance bandwidth is broadband. When the wavelength of the pump wave is constant, if the group velocity difference between the signal wave and the generated idler wave is small, the signal phase-matching bandwidth is broad. Second, we calculate the group velocity versus wavelength in the PPLN. When the pump wavelength is 1050 nm and the generated idler wavelength is about 3.4  $\mu\text{m}$ , the group velocity difference between the pump and the idler is small, the corresponding pump acceptance bandwidth is wide. Third, we establish a fiber-laser-based DFG, in which the seed is spectrally broadened in a 6-cm-long PM980 fiber by self-phase modulation (SPM) and pulse-compressed by a pair of SF57 prisms. The generated pulse train has an average power of 2 W and a full width at half maximum (FWHM) pulse duration of 35 fs. A part of it is used as the pump wave of the DFG, and the average power of the pump wave is 720 mW. The rest is free-spaced-coupled in a 10-cm-long photonics crystal fiber (PCF) with negative dispersion at 1050 nm. The output from the PCF is a supercontinuum and subsequently passes through a 3-mm-long silicon (Si) window. A soliton with an average power of 84 mW and an FWHM pulse duration of 67 fs is transmitted, which is used as the signal wave of the DFG. A couple of silver concave mirrors with a focus length of 50 mm are employed to focus both beams inside the PPLN crystal and collimate the output beams. The output beams subsequently pass through a 3-mm-long germanium window, and only the mid-infrared idler beam is transmitted.

**Results and Discussions** When the poling periods of the 1-mm-long PPLN crystal are 30.5  $\mu\text{m}$ , 30  $\mu\text{m}$ , and 29.5  $\mu\text{m}$ , the -10 dB bandwidths of the output from a DFG based on these PPLN crystals are 2.72–4.15  $\mu\text{m}$ , 2.77–3.97  $\mu\text{m}$ , and 2.82–3.82  $\mu\text{m}$ , respectively. The corresponding average powers are measured to be 7.5 mW, 15 mW, and 13.6 mW. When the poling periods of the 3-mm-long PPLN crystal are 30.5  $\mu\text{m}$ , 30  $\mu\text{m}$ , and 29.5  $\mu\text{m}$ , the -10 dB bandwidths of the output from a DFG based on these PPLN crystals are 2.87–4.08  $\mu\text{m}$ , 2.77–3.9  $\mu\text{m}$ , and 3–3.75  $\mu\text{m}$ , respectively. The corresponding average powers are measured to be 23 mW, 45 mW, and 39 mW. The conversion efficiency is increased with the increase of the length of the PPLN crystal, meanwhile, the bandwidth of the generated idler wave is decreased. Compared with the traditional DFGs based on the PPLN crystal, the bandwidth of the output from our well-built DFG is wider. In the simulation, given that the pump wave and signal wave center at 1050 nm and 1525 nm, the intensities of the pump wave and the signal wave are 1  $\text{GW}/\text{cm}^2$  and 0.6  $\text{GW}/\text{cm}^2$ , respectively. The FWHM pulse durations of the pump wave and the signal wave are 35 fs and 67 fs. The spectra are shown in Figs. 7 (a) and 7(b), where the poling period of the 1-mm-long PPLN crystal is 30  $\mu\text{m}$ . The spectrum of the idler wave generated from the DFG is shown in Fig. 7(c), which is similar to that in our experiment.

**Conclusions** By derivation, we find that when the group velocity difference between the pump wave and the generated idler wave is small, the pump acceptance bandwidth is broad. In a PPLN crystal, when the pump wavelength is 1050 nm and the generated idler wavelength is about 3.4  $\mu\text{m}$ , the group velocity difference between the pump wave and the idler wave is small, and thus the corresponding pump acceptance bandwidth is wide. In



addition, we report an ultra-short-pulse-pumped DFG, by using a 1-mm-long PPLN crystal with a poling period of 29.5  $\mu\text{m}$ , and we obtain mid-infrared sources with bandwidths covering 2.72–4.15  $\mu\text{m}$  and an average power of 7.5 mW. Meanwhile, as indicated in the simulation, when the central wavelengths of the pump wave and the signal wave are 1050 nm and 1525 nm, respectively, increasing the bandwidth of the pump wave can increase the bandwidth of the generated idler wave.

**Key words** lasers; difference frequency generator; mid-infrared laser; broadband pump light; fiber laser