可调谐超短中红外激光脉冲的参变产生与放大 及其最新进展

陈列尊1,2 文双春1

(¹湖南大学信息科学与工程学院微纳光电器件及应用教育部重点实验室,湖南长沙 410082 ² 衡阳师范学院物理与电子信息科学系,湖南 衡阳 421008

摘要 介绍了基于非线性光学参变过程产生和放大中红外可调谐超短激光脉冲的主要方法,比较了参变振荡、差频产生、光学参变放大和啁啾脉冲光学参变放大等4种产生与放大方法的技术特点,重点评述了最近10年来国内 外利用光学参变放大和啁啾脉冲光学参变放大实现大增益宽带和高峰值功率输出的最新进展。探讨了获得更高 能量/功率和更短脉冲(更大带宽)中红外激光输出的关键问题和技术瓶颈及其解决途径。 关键词 非线性光学;中红外激光;光参变过程;超宽带参变放大;啁啾脉冲参变放大

中图分类号 TN219 文献标识码 A **doi**: 10.3788/LOP48.081902

Recent Advances and Methods of Optical Parametric Generation and Amplification for Tunable Ultra-Short Mid-Infrared Pulse

Chen Liezun^{1,2} Wen Shuangchun¹

 ¹ Key Laboratory for Micro/Nano Optoelectronic Devices of Ministry of Education, School of Information Science and Engineering, Hunan University, Changsha, Hunan 410082, China
² Department of Physics and Electronic Information Science, Hengyang Normal University, Hengyang, Hunan 421008, China

Abstract The main methods of generation and amplification for tunable ultra-short middle-infrared laser pulses, based on nonlinear optical parametric process, are introduced briefly. The technical characteristics of the parametric oscillator, difference frequency generation, optical parametric amplification and chirped pulse optical parametric amplification are compared. Focusing on both expanding the gain bandwidth and improving the output power, the latest developments in the field of ultra-broadband optical parametric amplification and optical parametric chirped-pulse amplification in the past decade are highlighted. In addition, the key issues and technology bottlenecks as well as solutions of access to high energy/power and short pulse (broader bandwidth) are discussed.

Key words nonlinear optics; mid-infrared laser; nonlinear optical parametric process; ultra-broadband optical parametric amplification; optical parametric chirped-pulse amplification

OCIS codes 190.4410; 190.4970; 190.4975; 190.7110

1 引

言

3~5 μm 中红外波段与其他波段的激光如紫外和可见光或近红外激光等具有很强的互补特征,它对应 着含氢-氧、氢-氮、氢-碳和硫-氢键等大多数分子的转、振能级吸收光谱即分子的"指纹谱",广泛运用于物理 学、化学、生物学、医学、大气探测与环境保护等方面的科学研究,而且在国民经济、国家安全等领域具有重要

收稿日期: 2011-03-30; 收到修改稿日期: 2011-05-16; 网络出版日期: 2011-07-07

基金项目:国家自然科学基金(60890202)、湖南省自然科学基金联合项目(10JJ6001)和湖南省教育厅资助项目(Z12047) 资助课题。

作者简介:陈列尊(1968—),男,博士研究生,副教授,主要从事超快激光技术与二阶非线性光学等方面的研究。 E-mail: hychenlz@139.com

导师简介:文双春(1966—),男,教授,博士生导师,主要从事非线性光学与光电子学等方面的研究。 E-mail: scwen@hnu.edu.cn 的应用潜力[1~19]。经过几十年的发展,能够产生中红外激光的方法已经很多[20~26]。

但是,真正适合于 3~5 μ m 波段超短激光脉冲产生与放大的方法并不多,且其水平远落后于连续波和 长脉冲,更远落后于可见光和近红外波段的超短脉冲。与常规的可见光或近红外激光脉冲类似,当前 3~5 μ m超短激光脉冲的产生方法主要有锁模激光振荡器直接产生和非线性参变转换间接产生两大类。能 直接振荡产生中红外激光脉冲的激光器主要有自由电子激光器、量子级联半导体激光器和铅盐、锑化物激光 器^[27~30]。自由电子激光器因其输出波长与电子束能量相关,因而容易连续调谐,工作的波长范围很宽(从厘 米波到纳米波段)。Maas 等^[27]利用自由电子激光器成功产生了单脉冲能量为 2 μ J、脉宽为 350 fs、波长为 5 μ m的中红外脉冲,但其缺点是体积庞大、价格昂贵。量子级联半导体激光器能覆盖的波段也很宽 (2~30 μ m),最大输出功率已达百毫瓦量级,其缺点主要是电流阈值高、工作温度低、输出功率小。而由 Cr²⁺掺杂的 II-VI 族半导体激光晶体构成的固体激光器能覆盖 2~5 μ m 的中红外波段,最大输出功率约 1 W,最近已经实现了振荡级飞秒锁模,输出平均功率约 100 mW^[30]。

非线性转换间接产生方法是中红外超短激光产生的主要方法,主要包括光参变振荡(OPO)、光参变产 生(OPG)、差频产生(DFG)等。它们将高功率近红外激光通过非线性频率下转换来产生中红外激光,因此, 又被称为参变产生法。它们不仅具有宽的波长调谐范围,而且整个激光系统可以做到小型紧凑、全固态化, 加上可以获得很大的带宽,能够生成 100 fs 以内的超短脉冲。20 世纪 90 年代以来,基于非线性光学参变过 程的超短中红外脉冲产生与放大一直是激光研究与应用领域的一个热门课题^[31~44]。本文简要介绍了基于 非线性参变过程产生与放大 3~5 μm 可调谐中红外超短激光脉冲的主要方法,分析比较了参变振荡、差频 产生、参变放大和啁啾脉冲参变放大等四种方法的技术特点,重点讨论了最近 10 年来该领域超宽带参变放 大和啁啾脉冲参变放大的最新进展和最高水平。

2 超短中红外激光脉冲的参变产生

2.1 光参变振荡

光参变振荡克服了传统激光器受增益介质输出波长的限制,能够产生从紫外到远红外激光,它具有波长 调谐范围宽、输出效率高、结构简单紧凑、工作稳定可靠等技术特点。1989年,Edelstein等^[31]使用染料激光 器抽运磷酸钛氧钾(KTP)晶体得到 0.72~4.50 μm 范围毫瓦量级的飞秒中红外输出,是最早报道的飞秒同 步抽运光参变振荡器(SPOPO)。20世纪 90年代以来,随着一批优质非线性光学晶体的出现、成熟和大量应 用,以及非线性光学频率变换技术的迅速发展,光参变振荡及其应用技术取得了许多十分重要的突破性进 展。除少数系统外,人们主要以钛宝石激光器抽运 KTP、砷酸钛氧钾(KTA)、掺镁铌酸锂(MgLN), 铌酸钾 (KNB)、硒鎵化銀(AGSe)和硫镓化银 (AGS)等双折射非线性晶体,构成双折射晶体相位匹配的 SPOPO,来 产生超短中红外激光^[34,38],双折射晶体相位匹配 OPO 的典型结构如图 1 所示^[38]。

2005年,Kurti等^[42]以脉冲重复频率 120 MHz,脉宽 10 ps,最大单脉冲能量 250 μJ 的掺钕钇铝石榴石 (Nd:YAG)激光器作抽运源,抽运一对对称放置的 AGS 双折射晶体,输出闲频光经过压缩后得到约 500 fs 的 2.5~4.0 μm 中红外激光脉冲输出。在其基础上采用二级级联抽运方法,利用前级产生的中红外脉冲再 抽运后一级的晶体,可获得 5 μm 以外的中远红外激光脉冲。而由 KTP 晶体构成的同步抽运光参变振荡器



图 1 双折射相位匹配 OPO 典型结构

Fig. 1 Typical structure of birefringent phase-matching OPO



图 2 周期性极化晶体准相位匹配 OPO 典型结构 Fig. 2 Typical structure of quasi-phase matched OPO in periodically poled crystal 已经可以产生平均功率为800 mW、单脉冲能量约为9 nJ 量级的中红外飞秒激光脉冲,其峰值功率已达到100 kW 水平。

目前,由不同晶体构成的不同类型的飞秒和皮秒中红外超短脉冲 OPO 的基本概况如图 3 和图 4 所示。 综合来看,参变振荡法具有能量转换效率较高的优点,但由于其重复频率高,因而其单脉冲能量较低;而基于 周期性极化晶体准相位匹配技术的光参变振荡,不但具有较高的非线性转换效率,而且可以使那些在通常条 件下无法实现相位匹配的晶体或通光波段同样得以实现非线性频率变换,特别适用于连续和小型化下的频 率变换。从应用方面来说,这类高重复频率、低脉冲能量的中红外超短脉冲 OPO 光源主要适用于基于抽 运-探测光谱学之类的研究。



图 3 中红外飞秒脉冲 OPO 技术现状 Fig. 3 Technology status of mid-infrared femtosecond pulsed OPO



图 4 中红外皮秒脉冲 OPO 技术现状 Fig. 4 Technology status of mid-infrared picosecond pulsed OPO

2.2 差频产生

除了参变振荡外,通过双波长飞秒激光器的两个波长成分之间、两个同步的飞秒或皮秒激光器之间、或 者同步抽运光参变振荡器输出的信号光与闲频光之间的差频过程,也能产生超短中红外激光脉冲,但同样由 于很高的脉冲重复频率(近 100 MHz),其输出的脉冲能量非常小(通常不超过 1 nJ)^[34,35,38]。实际上,为了获

得较高脉冲能量的中红外脉冲,人们更多地是运用两个高 能激光脉冲在晶体中进行差频变换。差频产生法能够得 到脉宽仅几十飞秒的最短脉冲,因此,也是超短中红外激 光脉冲产生的常用方法。中远红外差频产生法常用的晶 体为 AGS、砷化镓银(AgGaAs₂)、砷化镓(GaAs)等半导体 晶体,这类晶体的通光范围较宽,可以得到波长覆盖范围 较大的红外输出,但是这类晶体的损伤阈值较低,因此输 出的单脉冲能量还是较小,最大输出能量为微焦量级。





1993年,Tokmakoff 等^[32]使用 Q 开关 Nd:YAG 锁相激光器的倍频光(532 nm)与染料激光器的输出光(611 nm)在 LNB 晶体中进行差频,得到中心波长4.1 μ m、单脉冲能量 2 μ J、脉宽 50 ps、重复频率 1 kHz 的中红外激光脉冲;1996年、1998年 Reed 等^[47,48]先后报道了脉冲重复频率在千赫兹量级的中红外差频产生装置,产生的中红外脉冲能量都接近 100 nJ 量级。2000年,Kaindl 等^[49]采用超连续谱光注入 GaSe 晶体,经过差频过程,得到脉宽 50 fs、波长 3~20 μ m 范围内调谐、单脉冲能量达 1 μ J 的红外输出;2007年,Erny 等^[50]利用 MgPPLN 晶体构成的 DFG 产生的高强度中红外脉冲,波长在 3.2~4.8 μ m 范围内调谐,脉冲宽度小于 100 fs,输出平均功率最大值约 1 mW (3.6 μ m),脉冲重复频率为 82 MHz。同年,Brida 等^[51]利用差频得到目前已报道的差频法产生的最短中红外脉冲,脉冲宽度约为 30 fs,波长调节范围为3~5 μ m,脉冲重复频率 1 kHz。经参变放大后最大单脉冲能量为 2 μ J,其实验装置如图 5 所示^[51],其中 DL 为光学延迟线,DM 为双色镜。

在 OPO 和 DFG 等方法中,参变振荡法需要谐振腔的精确匹配,并且对输入光及非线性晶体的要求较高, 而差频产生法具有单通实验结构,因而无需复杂腔型调整、输出激光调谐范围宽、效率较高等综合优点^[25]。

运用光参变荧光放大或超连续的方法也能直接产生超短中红外脉冲,由于 OPG 与光参变放大器 (OPA)的工作原理相同,只是 OPA 的种子信号是由外部注入的,而 OPG 是通过参变荧光自己产生的,因 而,这两者在 OPA 中一并进行介绍。

3 中红外激光脉冲的超宽带参变放大

许多科学研究与应用场合,往往需要更高功率/能量的中红外激光脉冲,所以必须对它们做进一步的放 大。由于中红外激光增益介质的限制,传统的可见或近红外波段的非参变放大方法如再生放大并不适用于 中红外激光。因此,自 20 世纪 90 年代以来,基于光参变过程的方法开始广泛运用于中红外激光脉冲的产生 与放大,利用参变放大的高增益性在增益饱和点进行放大可以得到稳定的大能量高功率飞秒中红外激光输 出,使之迅速成为获得大能量高功率飞秒中红外激光的主要手段。与 OPO 类似,除少数系统外,中红外 OPG 和 OPA 也大多以飞秒钛宝石激光系统为抽运源。参变放大的信号注入方式有很多,如准连续波注入、 参变产生信号光注入、同步抽运激光器输出光注入、超连续注入以及差频输出光注入等^[20,36,52,53]。通过放大 可得到脉宽仅数十飞秒,单脉冲能量数十微焦的较高峰值功率的超短超强中红外激光脉冲。因为超连续谱 具有很宽的谱宽,采用超连续谱注入的方式不但可以实现信号光与抽运光之间的精确同步,而且可以在不进 行晶体角度调谐的情况下得到较宽波长调谐范围的中红外输出,因此,超连续注入的光参变放大成为目前用 来产生高功率飞秒中红外激光脉冲的重要方法^[22]。随着晶体技术的发展与成熟,高抗光损伤晶体如 KTP, 以及其同构 RTA,KTA 和 MgLN 也成功运用于种子注入式 OPA,产生光谱范围在 3~5 μm 可调谐高强度 飞秒中红外激光脉冲^[49,53~61]。

从前面的分析可知,已有多种方法可以产生100 fs 量级甚至更短的超短中红外激光脉冲,为了放大这些 超短脉冲同时保持其脉冲宽度不变,放大器的增益带宽必须超过输入脉冲的带宽^[26,33,45,48,50,62~65]。显然,一 般的参变放大器的带宽是远远不能满足这个要求的,必须使用超宽带参变放大器(UBOPA)。当前的超宽 带参变放大器主要有两种形式:1)是共轴简并放大模式^[66~69];2)非共轴放大模式^[48,64,70~74]。在这两种模 式的基础上结合波前倾斜,信号或抽运束角色散或使用多个抽运以及晶体串接补偿^[64,68,72,75~77]等各种方法, 进一步扩展其放大带宽,取得了很好的实验效果。

20世纪 90 年代,德国的 Max-Born 非线性光学与超快光谱学研究所在这方面成就卓越^[49,53~59]。从 1994 年开始,他们以钛宝石再生放大器为抽运源,抽运光脉宽为 150 fs,抽运脉冲波长可在 740~850 nm 之 间调节,单脉冲能量为 0.3 mJ,一部分能量抽运硼酸锂(LBO)晶体产生中心波长在 1.1 μ m 左右的参变光, 产生的参变光再经偏硼酸钡(BBO)晶体进行放大,然后用 AGS 晶体进行差频,产生脉冲宽度为 160 fs、波长 调谐范围为 3.3~10.0 μ m 的中红外激光输出,在 5 μ m 波长处单脉冲输出能量约 50 nJ^[33]。到了 1999 年, 他们在一个由 10 mm 长的 MgLN 晶体构成的单级参变放大器中,观察到近 130 fs 的 3.5 μ m 闲频光脉冲, 脉冲能量达到 5 μ J。更高的效率是由两个 8 mm 的 MgLN 晶体构成的两级参变放大器配置实现的,输出的 闲频光脉冲能量增加至 15 μ J,波长为在 3.6 μ m,脉冲宽度为 160 fs。在这两种情况下,闲频光脉冲均为带 宽极限脉冲,且在 3 μm 附近实现了 5 个光学周期的超短中红外飞秒脉冲[56]。

2004 年, Wang 等^[78]采用中心波长为 800 nm, 单脉冲能量 3 mJ, 脉宽约 135 fs, 脉冲重复频率为 1 kHz 的钛宝石再生放大器作抽运源, 两块长度同为 3 mm, II 类相位匹配切割角在 θ=43°, φ=0°处的 KTA 晶体作 放大介质,构成同步抽运超连续谱注入的光参变放大器,得到波长调节范围为2.9~4.0 μm、脉宽为 140 fs、 单脉冲能量达 70 μJ 的中红外输出。

2008年,Brida等^[64]利用周期性极化晶体准相位匹配技术设计实施的超宽带参变放大器,获得波长调节 范围为 2~5 μm、脉宽最小为 25 fs(3.6 μm)、单脉冲能量最大约2 μJ的中红外超短脉冲输出,其实验装置与 图 5 类似,但它是用周期极化化学计量比钽酸锂(PPSLT)替换了前面的双折射率非线性晶体。

参变放大存在增益饱和区,当参变放大运行在深度饱和区时可以得到稳定的放大输出,而采用超连续谱 注入参变放大,不但可方便地得到较宽波长范围的信号光,也容易实现抽运脉冲与种子信号脉冲之间的精确 同步。与差频方法相比,受晶体材料透光范围的限制,参变放大法输出光调谐范围还是相对较小,但由于采 用了高峰值强度的抽运源和大尺寸的非线性晶体,参变放大法输出的功率比差频产生法和参变振荡法输出 的功率要高。

然而,由于抽运源也是超短脉冲,在进行参变放大时,受晶体损伤功率强度阈值的限制,抽运源的抽运强 度增加是有限的,而近红外抽运光波长又远小于中红外波长,加上抽运源和放大脉冲的带宽都较大,共同导 致中红外 OPA 的转换效率还很低,不足抽运功率的 10%,其输出功率仍然较小且成本很高。因此,既继承 了一般参变放大器优点又能克服上述缺点的超宽带啁啾脉冲参变放大器成为又一个研究热点。

4 中红外激光的超宽带啁啾脉冲参变放大

如前所述,由上述方法产生的中红外超短激光脉冲的能量仍然较小,为几个或几十个微焦以内,比近红外 波段的飞秒激光最高脉冲能量低 6~7 个数量级^[79]。例如,日本原子能研究所基于啁啾脉冲放大(CPA)技术, 采用四级全钛宝石激光放大器系统,已获得峰值功率为 850 TW (28.4 J/33 fs)的 800 nm 激光脉冲,而美国里 弗莫尔国家实验室的基于大口径钕玻璃的啁啾脉冲放大器系统,更是获得了峰值功率达 1.5 PW(660 J/440 fs) 的 1053 nm 激光脉冲^[73,80,81]。当前,受中红外波段能级型、大口径增益介质的限制,无法构建类似于近红外波 段的中红外 CPA 系统,为了实现更高峰值功率的中红外脉冲输出,人们开始寻求新的解决方案。

2007 年, Ishii 等^[82] 首次报道了运用啁啾脉冲光参变放大(OPCPA)对 2.1 μm 中红外脉冲进行放大的 实验结果,获得了约 350 μJ, 20 fs 的高能量、高峰值功率的脉冲输出, 2009 年他们又把输出功率提高到 700 μJ^[83]。对波长大于 3 μm 的 OPCPA,直到 2008 年才有报道, ICFO 的 Chalus 等^[84] 先报道了其对中红 外 OPCPA 进行理论设计和数值模拟的研究, 2009 年 Chalus 等^[63,85]和 2010 年 Heese 等^[86] 相继报道基于周 期性极化晶体准相位匹配技术、结构基本相似的 3~4 μm 中红外超宽带 OPCPA 的实验装置。由于 Heese 等^[86]采用了非均匀周期性极化晶体(APPLN),进一步扩展了放大器的增益带宽,获得了带宽大于 300 nm,脉冲宽度小于 100 fs,脉冲重复频率为 100 kHz,最大单脉冲能量约 1.2 μJ 的中红外脉冲输出。他们的实验 装置如图 6 所示,掺饵光纤激光器/放大器 Toptica FFS 两端口输出 2 路 1.5 μm 的红外脉冲,其中一路经高 非线性光纤进行光谱展宽至 1.05 μm(1.07 μm),再与另一路在由 MgPPLN 晶体构成的 DFG 中进行差频,获得带宽约 300 nm、单脉冲能量约 10 pJ 的中红外激光脉冲,输出波长调节范围为 3.4~4.8 μm。 DFG 输



图 6 基于 APPLN 的中红外 OPCPA 原理示意图 Fig. 6 Schematic diagram of mid-infrared OPCPA based on APPLN

出的中红外脉冲经展宽器展宽后(1~3 ps)再由 2 级 MgPPLN 构成的 OPA 进行放大,OPA 的抽运源为输 出波长为 1.064 µm、脉宽为 10 ps、单脉冲能量约100 µJ、重复频率为 100 kHz 的 Nd:YVO₄激光器。放大的 脉冲经压缩器压缩后得到宽度约 100 fs、能量约1 µJ的超短中红外脉冲输出。

由于报道的实验装置抽运源单脉冲输出能量较少,加上放大器带宽对转换效率的限制,目前的中红外 OPCPA 输出功率还是很小的,但毫无疑问,从近红外 OPCPA 发展过程与发展水平来看,该方案无疑是提高 输出功率最具潜力的方案,且容易定标放大,随着抽运脉冲能量的提高和晶体技术的进步,其潜力将很快显 现出来。当然,要实现高水平的超短中红外脉冲超宽带 OPCPA(UBOPCPA),必须解决 2 个问题:1)高单脉 冲能量抽运源的同步问题;2)进一步减少晶体色散特性对放大器带宽的限制问题。

目前,皮秒量级的近红外激光系统的单脉冲能量输出已经能达到焦耳量级,但其脉冲重复频率很低,都在1kHz以下,如果用它来抽运放大器的话,必须实现它们与种子之间的高精度同步,否则将严重影响OPCPA的输出性能。自1990年代以来,激光同步技术取得了显著进步,高重复频率的两激光振荡器的同步精度不断提高,有的已达亚飞秒级^[87~91]。基于同一种子源和抽运源的飞秒与皮秒再生放大器的同步控制也已实现,但其同步精度较低,相对时间抖动很大^[92]。2009年,本课题组采用全局时钟和电子锁相环伺服技术,实现了基于各自独立种子源振荡器的飞秒和皮秒再生放大系统(1kHz)的长时间、高精度同步稳定运行,运用基于统计学方法独立变量误差传递关系的光互相关测量法,对该系统的相对时间抖动进行了精确测量,结果表明,系统的相对时间抖动均方差仅为0.66 ps,且能长时间稳定运行^[93]。较好地解决了基于各自独立种子源振荡器的低重复频率的飞秒和皮秒再生放大系统的同步问题。

为了获得均匀的光谱放大,放大器的增益带宽必须超过信号源的带宽。然而,由于非线性晶体都不可避 免地存在色散效应,不同频率的光在晶体中的相速度和群速度是不一样的。对于各向异性的非线性晶体,可 以利用晶体的双折射效应来补偿由色散效应引起的相速度差异,实现相位匹配,即双折射相位匹配技术 (BPM)。同样,也可利用晶体的双折射效应实现群速匹配(GVM)。然而,一般情况下,对于大部分各向异 性的非线性晶体来说,这两种匹配是无法同时满足的,因为满足 BPM 和 GVM 的两种匹配方向一般不重合。 对于各向同性的非线性晶体,是利用晶体的正、反常色散来实现相位匹配(PM)和群速匹配的。然而,这两种 匹配也是无法同时满足的,因为满足 PM 和 GVM 所要求的正、反常色散材料的比例通常是不一样的。为了 获得带宽参变放大,人们先后提出并实验了多种宽带参变放大器结构,如非共轴模式[48.64.70~73]、共轴简并点 模式[66~69]、信号或抽运束角色散或多抽运模式以及晶体串接补偿模式[68.72.75~77]等。然而,共轴简并模式尽 管增益带宽较宽,但应用范围很窄,只能在一些特定波长处使用。而非共轴放大模式,尽管有设计灵活的优 点,但由于存在走离现象,限制了晶体长度和增益,且带宽扩展有限,而角色散模式还存在焦点位置功率过大 容易损伤的问题。Heese 等^[86]利用非均匀周期性极化晶体获得了中心波长为 3400 nm 带宽近 300 nm 的中 红外放大输出,但这种方法也有一个缺点,那就是使用非均匀周期性极化晶体这种放大器结构存在晶体的长 度限制问题,因为要获得更宽的带宽,就必需更多的周期结构,那么在晶体长度一定的情况下,每个周期的长 度就要减少,从而降低它们的放大倍数。此外,由于各种光谱成分都需要通过整个晶体,当晶体较长时,色散 的影响将显著增加,而由于中红外波段材料的色散更加复杂,往往具有很强的反常色散,因此,色散对中红外 参变振荡与放大带宽的影响更大,设计也更加复杂。

2010年,基于扇形周期性极化晶体全二维特性,课 题组提出并分析了一种基于扇形周期性极化晶体加脉冲 空间啁啾的 UBOPCPA 方案,其原理结构示意图如图 7 所示^[94]。通过空间色散将要放大的脉冲不同的光谱成 分分离使其分布在晶体不同的横向位置,由于不同横向 位置的晶体极化周期不一样,通过适当设计晶体极化周 期的扇出率和放大脉冲的色散空间宽度,使不同的光谱 成分在不同的横向位置同时实现准相位匹配,从而极大 地减少了晶体群速失配和群速色散失配对带宽的限制。 由于它是充分利用了晶体的宽度即横向方向的不同空间



图 7 新型 UBOPCPA 原理示意图 Fig. 7 Schematic diagram of the new type UBOPCPA

对不同光谱成分进行放大,因此,不存在非均匀周期性极化晶体总长度的限制问题,从理论上讲,其放大带宽 仅取决于晶体宽度和抽运的能量。理论分析和数值计算结果表明该 UBOPCPA 能定标放大 50 fs 以下的超 短中红外脉冲,而且,借助多抽运技术,还可实现对输出脉冲的光谱特性曲线的灵活调控。

5 结 论

通过介绍和分析比较,到目前为止,尽管 3~5 μm 中红外超短激光脉冲的最大峰值功率已超过 500 MW/cm²,最短脉冲宽度已达 25 fs,最高重复频率为 2.5 GHz,最大单脉冲能量约 70 μJ。但是,与科学 研究、国家安全等领域不断提出的要求相比,还是远远不够的。要获得更高能量/功率和更短脉宽的中红外 激光脉冲,一方面依赖于红外晶体技术的进步和抽运能量的提高,但另一方面,更依赖于参变放大器构型的 创新,特别是要减少甚至突破放大器带宽受晶体色散限制的技术瓶颈,使用非均匀周期性极化晶体或扇形周 期性极化晶体等准相位匹配技术无疑是一个重要方向,随着晶体技术的发展与成熟,将能够制造出更大的周 期性极化晶体,从而获得更大带宽和更高的输出能量。

参考文献

- S. Woutersen, U. Emmerichs, H. Bakker. Femtosecond mid-IR pump-probe spectroscopy of liquid water: Evidence for a two-component structure[J]. Science, 1997, 278(5338): 658~660
- 2 Robert K. Shelton, Long-Sheng Ma, Henry C. Kapteyn *et al.*. Phase coherent optical pulse synthesis from separate femtosecond lasers[J]. *Science*, 2001, **293**(5533): 1286~1289
- 3 M. Nagai, R. Shimano, M. Kuwata-Gonokami. Electron-hole droplet formation in direct-gap semiconductors observed by mid-infrared pump-probe spectroscopy[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, **86**(25): 5795~5798
- 4 R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Uiberacker *et al.*. Atomic transient recorder [J]. *Nature*, 2004, **427** (6977): 817~821
- 5 R. N. Zare. Laser control of chemical reactions[J]. Science, 1998, 279(5358): 1875~1879
- 6 J. Headrick, E. Diken, R. Walters *et al.*. Spectral signatures of hydrated proton vibrations in water clusters[J]. Science, 2005, **308**(5729): 1765~1769
- 7 A. Assion, T. Baumert, M. Bergt *et al.*. Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses[J]. Science, 1998, 282(5390): 919~922
- 8 Zhao Xiaohui, Nie Zhichu, Zhang Lianshui *et al.*. Study on tea and its principal components by infrared spectroscopy [J]. Acta Optica Sinica, 2009, **29**(2): 533~536

赵晓辉, 聂志矗, 张连水 等. 茶叶及其组份的红外光谱研究[J]. 光学学报, 2009, 29(2): 533~536

- 9 G. B. Serapiglia, K. L. Vodopyanov, C. C. Phillips. Nonequilibrium electron distributions in a three-subband InGaAs/ InAlAs quantum well studied via double resonance spectroscopy[J]. Appl. Phys. Lett., 2000, 77(6): 857~859
- 10 Wang Liusan, Cao Zhensong, Wang Huan et al. A widely tunable mid-Infrared difference frequency generation laser and its detection of atmospheric water[J]. Acta Optica Sinica, 2011, 31(4): 0414003

汪六三,曹振松,王 欢等. 宽调谐中红外差频激光及大气水气浓度探测[J]. 光学学报, 2011, 31(4): 0414003

- 11 R. A. Kaindl, M. Woerner, T. Elsaesser et al.. Ultrafast mid-Infrared response of YBa₂Cu₃O₇ [J]. Science, 2000, 287(5452): 470~473
- 12 D. Richter, A. Fried, B. Wert *et al.*. Development of a tunable mid-IR difference frequency laser source for highly sensitive airborne trace gas detection[J]. *Appl. Phys. B*, 2002, 75(2): 281~288
- 13 S. H. Bhattacharya, T. J. Raiford, K. K. Murray. Infrared laser desorption/ionization on silicon[J]. Anal. Chem., 2002, 74(9): 2228~2231
- 14 J. Herbst. Femtosecond infrared spectroscopy of bacteriorhodopsin chromophore isomerization [J]. Science, 2002, 297(5582): 822~825
- 15 Lai Bo, Qin Hongke, Zhou Yuexi et al.. Rapid detection of the degradation of the typical pollutants from ABS wastewater using fourier transform infrared spectroscopy[J]. Acta Optica Sinica, 2011, 31(2): 0230001

赖 波,秦红科,周岳溪等.应用红外光谱技术快速检测 ABS 废水中特征污染物的分解转化[J].光学学报,2011, 31(2):0230001

16 P. Geiser, U. Willer, D. Walter et al. A subnanosecond pulsed laser-source for mid-infrared LIDAR [J]. Appl. Phys.

B, 2006, 83(2): 175~179

- 17 C. Bauer, P. Geiser, J. Burgmeier *et al.*. Pulsed laser surface fragmentation and mid-infrared laser spectroscopy for remote detection of explosives[J]. *Appl. Phys. B*, 2006, 85(2): 251~256
- 18 P. Nemes, A. Vertes. Laser ablation electrospray ionization for atmospheric pressure, in vivo, and imaging mass spectrometry[J]. Anal. Chem., 2007, 79(21): 8098~8106
- 19 A. Nadezhdinskii, Y. Ponurovskii, D. Stavrovskii. Non-contact detection of explosives by means of a tunable diode laser spectroscopy[J]. Appl. Phys. B, 2008, 90(2): 361~364
- 20 Chui Dafu, Li Jie. The generation and latest progress of ultrashort mid-infrared pulse[J]. *Wuli* (*Physics*), 1994, **23**(3): 173~178

崔大复,李 杰. 中红外超短脉冲的产生及其研究的最新进展[J]. 物理, 1994, 23(3): 173~178

- 21 M. Dunn, M. Ebrahimzadeh. Parametric generation of tunable light from continuous-wave to femtosecond pulses [J]. Science, 1999, 286(5444): 1513~1517
- 22 Deng Ying, Zhu Qihua, Zeng Xiaoming et al.. The generation and recent progress of ultrashort mid-infrared pulse[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2006, 43(8): 21~26
- 邓 颖,朱启华,曾小明等. 超短中红外激光脉冲的产生及其发展状况[J]. 激光与光电子学进展, 2006, 43(8): 21~26
- 23 Sheng Quan, Ding Xin, Chen Na et al.. Continuous-wave tunable intra-cavity optical parametric oscillator and orange-red source[J]. Chinese J. Lasers, 2010, 37(11): 2821~2824

盛 泉,丁 欣,陈 娜等. 连续波可调谐内腔光学参量振荡器及橙红光源[J]. 中国激光, 2010, 37(11): 2821~2824

- 24 A. Godard. Infrared (2 \sim 12 μ m) solid-state laser sources: a review[J]. C. R. Phys., 2007, 8(10): 1100 \sim 1128
- 25 Wu Xiaoli, Han Haiyan, Wang Wei *et al.*. Progress in mid-infrared femtosecond pulse generation with difference frequency techniques[J]. *Physics*, 2009, **38**(4): 261~266
- 吴晓丽,韩海年,王 薇等. 差频产生中红外飞秒激光脉冲的研究进展[J]. 物理, 2009, 38(4): 261~266
- 26 D. Brida, C. Manzoni, G. Cirmi *et al.*. Few-optical-cycle pulses tunable from the visible to the mid-infrared by optical parametric amplifiers[J]. J. Opt., 2010, 12(1): 013001
- 27 D. Maas, D. Duncan, A. van der Meer *et al.*. Vibrational ladder climbing in NO by ultrashort infrared laser pulses[J]. *Chem. Phys. Lett.*, 1997, **270**(1~2): 45~49
- 28 C. Y. Wang, L. Kuznetsova, V. M. Gkortsas et al.. Mode-locked pulses from mid-infrared quantum cascade lasers[J]. Opt. Express, 2009, 17(15): 12929~12943
- 29 S. Mirov, V. Fedorov, I. Moskalev *et al.*. Progress in Cr²⁺ and Fe²⁺ doped mid-IR laser materials[J]. *Laser Photonics* Rev., 2010, 4(1): 21~41
- 30 E. Sorokin, I. Sorokina, J. Mandon et al.. Sensitive multiplex spectroscopy in the molecular fingerprint 2. 4 μm region with a Cr²⁺: ZnSe femtosecond laser[J]. Opt. Express, 2007, 15(25): 16540~16545
- 31 D. Edelstein, E. Wachman, C. Tang. Broadly tunable high repetition rate femtosecond optical parametric oscillator[J]. Appl. Phys. Lett., 1989, 54(18): 1728~1730
- 32 A. Tokmakoff, C. Marshall, M. Fayer. Optical parametric amplification of 1-kHz high-energy picosecond midinfrared pulses and application to infrared transient-grating experiments on diamond [J]. J. Opt. Soc. Am. B, 1993, 10(9): 1785~1791
- 33 F. Seifert, V. Petrov, M. Woerner. Solid-state laser system for the generation of mid-infrared femtosecond pulses tunable from 3.3 to 10 μm[J]. Opt. Lett., 1994, 19(23): 2009~2011
- 34 D. E. Spence, S. Wielandy, C. L. Tang *et al.*. High average power, high-repetition rate femtosecond pulse generation in the 1-5 μ m region using an optical parametric oscillator[J]. Appl. Phys. Lett., 1996, 68(4): 452~454
- 35 K. C. Burr, C. L. Tang, M. A. Arbore *et al.*. High-repetition-rate femtosecond optical parametric oscillator based on periodically poled lithium niobate[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1997, **70**(25): 3341~3343
- 36 G. Gale, G. Gallot, F. Hache *et al.*. Generation of intense highly coherent femtosecond pulses in the mid infrared[J]. Opt. Lett., 1997, 22(16): 1253~1255
- 37 J. Hong, A. Bawagan, S. Charbonneau *et al.*. Broadly tunable femtosecond pulse generation in the near and mid-infrared [J]. Appl. Opt., 1997, 36(9): 1894~1897
- 38 D. Reid, G. Kennedy, A. Miller *et al.*. Widely tunable, near-to mid-infrared femtosecond and picosecond optical parametric oscillators using periodically poled LiNbO₃ and RbTiOAsO₄[J]. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, 1998, 4(2): 238~248
- 39 P. Phillips, S. Das, M. Ebrahimzadeh. High-repetition-rate, all-solid-state, Ti: sapphire-pumped optical parametric

oscillator for the mid-infrared[J]. Appl. Phys. Lett., 2000, 77(4): 469~472

- 40 M. Ebrahimzadeh, P. Phillips, S. Das. Low-threshold mid-infrared optical parametric oscillation in periodically poled LiNbO₃ synchronously pumped by a Ti: sapphire laser[J]. Appl. Phys. B, 2001, 72(7): 793~801
- 41 M. Tiihonen, V. Pasiskevicius, F. Laurell. Spectral and spatial limiting in an idler-resonant PPKTP optical parametric oscillator[J]. Opt. Commun., 2005, 250(1-3): 207~211
- 42 R. S. Kurti, K. D. Singer. Pulse compression in a silver gallium sulfide, midinfrared, synchronously pumped optical parametric oscillator[J]. J. Opt. Soc. Am. B, 2005, 22(10): 2157~2163
- 43 M. Henriksson, M. Tiihonen, V. Pasiskevicius *et al.*. Mid-infrared ZGP OPO pumped by near-degenerate narrowband type-I PPKTP parametric oscillator[J]. *Appl. Phys. B*, 2007, 88(1): 37~41
- 44 X. Bo, Z. Shu-Bao, G. Lin *et al.*. Period continuous tuning of an efficient mid-infrared optical parametric oscillator based on a fan-out periodically poled MgO-doped lithium niobate[J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2010, **27**(1): 014206
- 45 K. Burr, C. Tang, M. Arbore *et al.*. Broadly tunable mid-infrared femtosecond optical parametric oscillator using all-solidstate-pumped periodically poled lithium niobate[J]. *Opt. Lett.*, 1997, **22**(19): 1458~1460
- 46 B. Zhou, C. Q. Xu, B. Chen. Comparison of difference frequency generation and cascaded χ² based wavelength conversions in LiNbO₃ quasi-phase-matched waveguides[J]. J. Opt. Soc. Am. B, 2003, 20(5): 846~852
- 47 M. Reed, M. Shepard. Tunable infrared generation using a femtosecond 250 kHz Ti: sapphire regenerative amplifier[J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 1996, 32(8): 1273~1277
- 48 B. Golubovic, M. Reed. All-solid-state generation of 100 kHz tunable mid-infrared 50 fs pulses in type I and type II AgGaS₂[J]. Opt. Lett., 1998, 23(22): 1760~1762
- 49 R. A. Kaindl, M. Wurm, K. Reimann *et al.*. Generation, shaping, and characterization of intense femtosecond pulses tunable from 3 to 20 μm[J]. J. Opt. Soc. Am. B: Opt. Phys., 2000, 17(12): 2086~2094
- 50 C. Erny, K. Moutzouris, J. Biegert *et al.*. Mid-infrared difference-frequency generation of ultrashort pulses tunable between 3.2 and 4.8 μm from a compact fiber source[J]. *Opt. Lett.*, 2007, **32**(9): 1138~1140
- 51 D. Brida, C. Manzoni, G. Cirmi *et al.*. Generation of broadband mid-infrared pulses from an optical parametric amplifier [J]. *Opt. Express*, 2007, **15**: 15035~15040
- 52 G. Holtom, R. Crowell, X. Xie. High-repetition-rate femtosecond optical parametric oscillator amplifier system near 3 μm [J]. J. Opt. Soc. Am. B, 1995, **12**(9): 1723~1731
- 53 V. Petrov, F. Noack. Tunable femtosecond optical parametric amplifier in the mid-infrared with narrow-band seeding[J]. J. Opt. Soc. Am. B, 1995, 12(11): 2214~2221
- 54 V. Petrov, F. Noack. Mid-infrared femtosecond optical parametric amplification in potassium niobate[J]. Opt. Lett., 1996, **21**(19): 1576~1578
- 55 V. Petrov, F. Noack, R. Stolzenberger. Seeded femtosecond optical parametric amplification in the mid-infrared spectral region above 3 μm[J]. Appl. Opt., 1997, 36(6): 1164~1172
- 56 F. Rotermund, V. Petrov, F. Noack *et al.*. Laser-diode-seeded operation of a femtosecond optical parametric amplifier with MgO:LiNbO₃ and generation of 5-cycle pulses near 3 μm[J]. J. Opt. Soc. Am. B, 1999, **16**(9): 1539~1545
- 57 Peng Yuefeng, Wei Xingbin, Wang Weimin *et al.*. High-efficiency 2. 7 μm tunable mid-infrared laser[J]. Acta Optica Sinica, 2009, **30**(9): 2624~2628

彭跃峰,魏星斌,王卫民等.高效率中红外2.7 μm可调谐激光器[J].光学学报,2009,30(9):2624~2628

- 58 F. Rotermund, V. Petrov, F. Noack *et al.*. Optical parametric generation of femtosecond pulses up to 9 μm with LiInS₂ pumped at 800 nm[J]. Appl. Phys. Lett., 2001, 78(18): 2623~2625
- 59 V. Petrov, F. Rotermund, F. Noack. Generation of high-power femtosecond light pulses at 1 kHz in the mid-infrared spectral range between 3 and 12 μm by second-order nonlinear processes in optical crystals[J]. J. Opt. A, 2001, 3(3): R1~R19
- 60 Tan Huiming, Lin Hongyi, Zhang Bolin. Mid-infrared tunable all-solid-state optical parametric oscillator based on PPMgLN [J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(9): 2303~2306 檀慧明,林洪沂,张搏麟. 基于 PPMgLN 的中红外全固态可调谐光学参量振荡器[J]. 中国激光, 2010, **37**(9):
- 61 J. Kafka, M. Watts, J. Pieterse. Synchronously pumped optical parametric oscillators with LiB₃O₅[J]. J. Opt. Soc. Am. B: Opt. Phys., 1995, 12(9): 2147~2157
- 62 A. Bonvalet, M. Joffre, J. L. Martin *et al.*. Generation of ultrabroadband femtosecond pulses in the mid-infrared by optical rectification of 15 fs light pulses at 100 MHz repetition rate[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **67**(20): 2907~2909

- 63 O. Chalus, P. K. Bates, M. Smolarski et al.. Mid-IR short-pulse OPCPA with micro-Joule energy at 100 kHz[J]. Opt. Express, 2009, 17(5): 3587~3594
- 64 D. Brida, M. Marangoni, C. Manzoni *et al.*. Two-optical-cycle pulses in the mid-infrared from an optical parametric amplifier[J]. Opt. Lett., 2008, 33(24): 2901~2903
- 65 J. Price, T. Monro, H. Ebendorff-Heidepriem *et al.*. Mid-IR supercontinuum generation from nonsilica microstructured optical fibers[J]. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, 2007, 13(3): 738~749
- 66 S. Hadrich, J. Rothhardt, F. Roser et al.. Degenerate optical parametric amplifier delivering sub 30 fs pulses with 2 GW peak power[J]. Opt. Express, 2008, 16(24): 19812~19820
- 67 J. Rothhardt, S. Hadrich, F. Roser *et al.*. 500 MW peak power degenerated optical parametric amplifier delivering 52 fs pulses at 97 kHz repetition rate[J]. *Opt. Express*, 2008, **16**(12): 8981~8988
- 68 C. Aguergaray, O. Schmidt, J. Rothhardt *et al.*. Ultra-wide parametric amplification at 800 nm toward octave spanning [J]. Opt. Express, 2009, 17(7): 5153~5162
- 69 I. Jovanovic, B. J. Comaskey, C. A. Ebbers *et al.*. Optical parametric chirped-pulse amplifier as an alternative to Ti: sapphire regenerative amplifiers[J]. *Appl. Opt.*, 2002, **41**(15): 2923~2929
- 70 Chih-Wei Hsu, C. C. Yang. Broadband infrared generation with noncollinear optical parametric processes on periodically poled LiNbO₃[J]. *Opt. Lett.*, 2001, **26**(18): 1412~1414
- 71 A. Baltuška, T. Fuji, T. Kobayashi. Controlling the carrier-envelope phase of ultrashort light pulses with optical parametric amplifiers[J]. Phys. Rev. Lett., 2002, 88(13): 133901
- 72 O. Isaienko, E. Borguet. Generation of ultra-broadband pulses in the near-IR by non-collinear optical parametric amplification in potassium titanyl phosphate[J]. Opt. Express, 2008, 16(6): 3949~3954
- 73 K. Yamakawa, M. Aoyama, Y. Akahane *et al.*. Ultra-broadband optical parametric chirped-pulse amplification using an Yb: LiYF₄ chirped-pulse amplification pump laser[J]. Opt. Express, 2007, 15(8): 5018~5023
- 74 D. Kraemer, M. Cowan, R. Hua *et al.*. High-power femtosecond infrared laser source based on noncollinear optical parametric chirped pulse amplification[J]. J. Opt. Soc. Am. B, 2007, 24(4): 813~818
- 75 E. Sorokin, S. Naumov, I. Sorokina. Ultrabroadband infrared solid-state lasers [J]. IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron., 2005, 11(3): 690~712
- 76 L. J. Waxer, V. Bagnoud, I. A. Begishev et al.. High-conversion-efficiency optical parametric chirped-pulse amplification system using spatiotemporally shaped pump pulses[J]. Opt. Lett., 2003, 28(14): 1245~1247
- 77 L. Cardoso, G. Figueira. Broadband amplification in non-linear crystals using controlled angular dispersion of signal beam [J]. Opt. Commun., 2005, 251(4-6): 405~414
- 78 J. C. Wang, J. Wang. Experimental and theoretical analysis of white-light seeded, collinear phase-matching, femtosecond optical parametric amplifiers[J]. J. Opt. Soc. Am. B, 2004, 21(1): 45~56
- 79 N. Ishii, L. Turi, V. S. Yakovlev et al.. Multimillijoule chirped parametric amplification of few-cycle pulses[J]. Opt. Lett., 2005, 30(5): 567~569
- 80 M. Aoyama, K. Yamakawa, Y. Akahane et al. 0.85 PW, 33 fs Ti: sapphire laser[J]. Opt. Lett., 2003, 28(17): 1594 ~1596
- 81 K. Yamakawa, M. Aoyama, Y. Akahane et al.. Ultra-broadband optical parametric chirped-pulse amplification using an Yb: LiYF₄ chirped-pulse amplification pump laser[J]. Opt. Express, 2007, 15(6): 5018~5023
- 82 N. Ishii, X. Gu, T. Fuji *et al.*. Development of a few-cycle infrared OPCPA system and its use in high-harmonic generation[C]. CLEO, 2007, CMK: CMK2
- 83 X. Gu, G. Marcus, Y. Deng *et al.*. Generation of carrier-envelope-phase-stable 2-cycle 740 μJ pulses at 2.1 μm carrier wavelength[J]. Opt. Express, 2009, 17(1): 62~69
- 84 O. Chalus, P. K. Bates, J. Biegert. Design and simulation of few-cycle optical parametric chirped pulseamplification at mid-IR wavelengths[J]. Opt. Express, 2008, 16(26): 21297~21304
- 85 C. Erny, L. Gallmann, U. Keller. High-repetition-rate femtosecond optical parametric chirped-pulse amplifier in the midinfrared[J]. Appl. Phys. B, 2009, 96(2-3): 257~269
- 86 C. Heese, C. Phillips, L. Gallmann et al.. Ultrabroadband, highly flexible amplifier for ultrashort midinfrared laser pulses based on aperiodically poled Mg: LiNbO₃[J]. Opt. Lett., 2010, 35(14): 2340~2342
- 87 L. S. Ma, R. Shelton, H. Kapteyn et al.. Sub-10-femtosecond active synchronization of two passively mode-locked Ti: sapphire oscillators[J]. Phys. Rev. A, 2001, 64(2): 021802
- 88 R. Shelton, S. Foreman, L. Ma et al.. Subfemtosecond timing jitter between two independent, actively synchronized,

mode-locked lasers[J]. Opt. Lett., 2002, 27(5): 312~314

- 89 J. Kim, J. Cox, J. Chen *et al.*. Drift-free femtosecond timing synchronization of remote optical and microwave sources[J]. *Nat. Photonics*, 2008, 2(12): 733~736
- 90 T. Schibli, J. Kim, O. Kuzucu *et al.*. Attosecond active synchronization of passively mode-locked lasers by balanced cross correlation[J]. Opt. Lett., 2003, 28(11): 947~949
- 91 J. Kim, J. Chen, J. Cox et al., Attosecond-resolution timing jitter characterization of free-running mode-locked lasers[J]. Opt. Lett., 2007, 32(24): 3519~3521
- 92 E. Hommel, H. Allen. Broadband sum-frequency generation with two regenerative amplifiers: temporal overlap of femtosecond and picosecond light pulses[J]. Anal. Sci., 2001, 17(1): 137~139
- 93 L. Chen, S. Wen, Y. Wang *et al.*. Synchronization and relative timing jitter measurement of femtosecond and picosecond laser regenerative amplifiers[J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 2010, 46(9): 1354~1359
- 94 L. Chen, S. Wen, Y. Wang *et al.*. Ultrabroadband optical parametric chirped-pulse amplifier using a fan-out periodically poled crystal with spectral spatial dispersion[J]. *Phys. Rev. A*, 2010, **82**(10): 043843