

激光与光电子学进展

飞秒激光脉内自差频产生中红外激光研究进展

王庆^{1,2,3*}, 漆磊^{1,2,3}, 王润雨^{1,2,3}, 李岩^{1,2,3}

¹北京理工大学光电学院, 北京 100081;

²信息光子技术工业和信息化部重点实验室, 北京 100081;

³光电成像技术与系统教育部重点实验室, 北京 100081

摘要 基于飞秒激光脉内自差频技术产生中红外波段激光的技术已取得较大的进步,并被广泛地应用在物理学、化学以及生物医学等重要科学领域。对中红外超短激光脉冲的发展与研究背景进行了介绍;阐述了飞秒激光脉内自差频产生中红外激光的基本原理;综述了基于钛宝石激光器、1 μm 波段飞秒固体激光器、2 μm 波段飞秒固体激光器及光纤激光器作为驱动源并通过脉内自差频技术产生中红外飞秒激光的研究进展,并对不同波段驱动源进行了对比分析;最后对脉内自差频产生中红外飞秒激光的未来发展方向进行了展望。

关键词 激光光学; 飞秒激光; 脉内自差频; 中红外激光; 宽光谱

中图分类号 TN248.1

文献标志码 A

doi: 10.3788/LOP202158.1700001

Research Progress of Mid Infrared Laser via Intra-Pulse Difference Frequency Generation of Femtosecond Laser

Wang Qing^{1,2,3*}, Qi Lei^{1,2,3}, Wang Runyu^{1,2,3}, Li Yan^{1,2,3}

¹School of Optics and Photonics, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China;

²Key Laboratory of Information Photonics Technology, Ministry of Industry and Information Technology, Beijing 100081, China;

³Key Laboratory of Photoelectronic Imaging Technology and System, Ministry of Education, Beijing 100081, China

Abstract Great progress has been made in the generation of ultrashort laser pulses in the mid-infrared (MIR) band of femtosecond laser by intra-pulse difference frequency technology, and it has been widely used in physics, chemistry, biomedicine, and other scientific areas. Firstly, the development and research background of MIR laser are introduced. Then the basic principle of intra-pulse difference frequency generation (DFG) of femtosecond laser is introduced. The progress on MIR pulse generation by intra-pulse DFG with different driving sources, such as Ti:sapphire laser, femtosecond laser at 1 μm waveband, femtosecond laser at 2 μm waveband, and fiber laser, is reviewed and compared. Finally, the future developments of the MIR femtosecond laser generated by intra-pulse DFG are prospected.

Key words laser optics; femtosecond laser; intra-pulse difference frequency generation; mid-infrared laser; broad spectrum

OCIS codes 140.3070; 300.6360; 320.2250

收稿日期: 2020-12-02; 修回日期: 2020-12-28; 录用日期: 2021-01-02

基金项目: 北京市自然科学基金(4172056)、中央高校基本科研业务费专项资金资助(2021CX02058)

通信作者: *qingwang@bit.edu.cn

1 引言

近年来,科研人员对 2~20 μm 的中红外波段超短脉冲激光开展了广泛的研究工作,并将其应用在不同科学领域。例如在强场物理领域,以中红外波段超短脉冲激光作为驱动光源产生的孤立软 X 射线阿秒脉冲具有更高光子能量^[1],是目前研究原子时间分辨和空间分辨动力学的重要工具^[2]。在化学和生物医学领域,不同分子在中红外光谱区有各自的特征“指纹”吸收谱^[3],因此基于已知的分子“指纹”可对复杂的生物组织分子组分进行分析和鉴别^[4]。飞秒中红外激光可实现时间分辨的高精度分子探测,超倍频程的宽带相干中红外飞秒脉冲激光可以用在电场分辨光谱学中,这种探测具有信噪比高^[5]、探测灵敏度高^[6]、大动态范围并且能够实现多种分子同时检测等优点^[7],因此研究稳定可靠的宽带中红外飞秒激光光源具有重要意义。

目前通过部分激光振荡器可直接获得中红外波段飞秒激光,如 2.4 μm 的 Cr:ZnSe/Cr:ZnS 锁模振荡器^[8-10]、2.1 μm 的 Ho:YAG 锁模振荡器^[11-12]以及 3 μm 的掺 Er³⁺ 激光器^[13]等,不过从这些振荡器中直接获得的红外激光存在着光谱范围较窄的问题,难以满足在光谱学探测中对多种分子同时检测的需求。除直接通过激光振荡器外,目前获得中红外激光的主要方法还采用飞秒激光脉内自差频技术^[14-20]、超连续光^[21-23]、双光束差频以及光参量放大和光参量振荡器^[24-28]等。其中,脉内自差频技术对比其他几种方案而言,具有载波包络相位稳定的特点^[29],不需要对泵浦光和信号光进行复杂的高精度时间同步及空间调整,并且其亮度可以达到近乎同步辐射光源的亮度^[15]。近十几年来,已有大量工作采用不同波段的飞秒光源实现单脉冲内自差频产生中红外飞秒脉冲。早期得益于掺钛蓝宝石激光器的成熟发展,人们开展了大量基于掺钛蓝宝石激光器的飞秒脉内自差频中红外激光产生研究^[1, 30-31],该技术能够获得少周期高能量的中红外飞秒脉冲,主要应用在强场物理领域。但基于掺钛蓝宝石的中红外激光输出带宽还难以覆盖波长较长的中红外波段。近年来,发展适用于分子指纹检测的宽光谱高亮度相干中红外光源变得迫切,目前已经有许多工作使用中心波长在近红外和中红外波段的固体锁模激光器或光纤激光器作为驱动源,在不同种类的非线性晶体中得到了超倍频程的宽

带中红外激光^[14, 20, 32-33]。本文对飞秒激光脉内自差频技术的原理进行了介绍,并综述了基于不同波段驱动光源脉内自差频产生中红外激光的相关研究进展情况。

2 脉内自差频原理概述

脉内自差频原理为:一束超短激光脉冲经过非线性介质,将单个脉冲内的短波和长波分量进行光学差频,以实现频率下转换,从而得到新的长波光谱成分。以钛宝石飞秒激光为例,脉内自差频过程的示意图如图 1 与图 2 所示,钛宝石驱动源的输出光谱中心波长为 800 nm,脉冲宽度为 5 fs,输出激光经过非线性晶体时,在满足相位匹配条件的情况下,对其脉冲光谱中的不同波段都能进行脉内自差频,从而获得低频的差频光。以光强下降到最大值的 $1/e^2$ 处的波长(700 nm, 900 nm)为例,700 nm 和 900 nm 的差频光对应中红外波段的波长为 3150 nm。

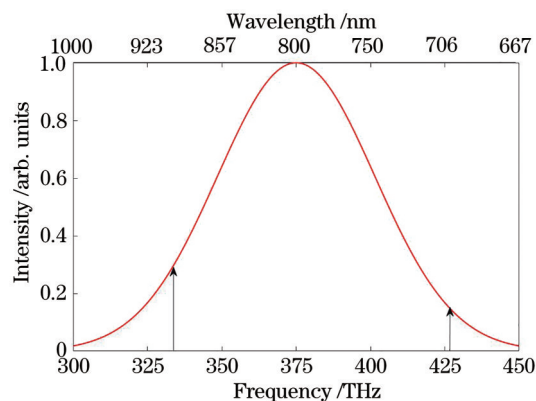


图 1 钛宝石飞秒激光光谱示意图

Fig. 1 Schematic spectrum of Ti:sapphire femtosecond laser

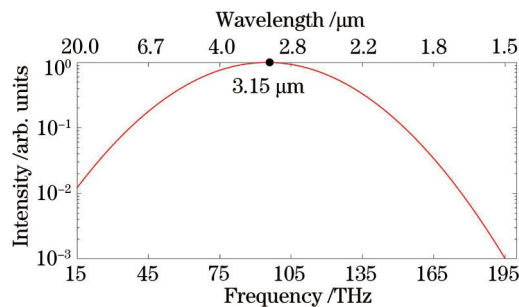


图 2 脉内自差频闲频光光谱示意图

Fig. 2 Schematic spectrum of intra-pulse difference frequency idler laser

从上述脉内自差频产生的机理可知,中红外光谱中的最短波段来源于驱动光源光谱中长波与

短波分量的差频过程^[32],且驱动光源光谱越宽,脉内自差频过程产生的中红外波段光谱也将越丰富,因此,经过非线性晶体的驱动光具有宽光谱范围,是拓宽脉内自差频中红外光谱的一个必要条件。

此外,非线性晶体也是一个需要重点考虑的对象,晶体的透光范围决定了采用驱动激光的波段范围以及中红外输出光谱的最长波段。因此,适合用作脉内自差频的非线性晶体应对驱动光波段以及宽带中红外波段均具有高透过率,并能够通过一定的方式满足相位匹配条件,以获得高转化效率。相位失配因子 $\Delta k = k_3 - k_2 - k_1$,其中 k_3, k_1, k_2 分别代表泵浦光、信号光和闲频光的波数,在脉内自差频过程中,泵浦光和信号光均来源于同一束脉冲激光,根据相位匹配方式的分类,如单轴晶体的第 II 类相位匹配条件,泵浦光和信号光也可以来源于同一束激光的不同偏振分量,这一过程在本质上还是差频过程。已知差频转换效率 η 与相位失配因子 Δk 的关系为

$$\eta \propto \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right), \quad (1)$$

晶体内的自差频过程属于共线相位匹配,因此有

$$k = \frac{n\omega}{c}, \quad (2)$$

$$\omega_2 = \omega_3 - \omega_1, \quad (3)$$

所以 Δk 可以写为

$$\Delta k = \frac{(n_3 - n_2)\omega_3 + (n_2 - n_1)\omega_1}{c}, \quad (4)$$

式中: ω 为角频率; L 为非线性晶体的长度; c 为真空光速; $n_x (x=1, 2, 3)$ 为对应频率下的晶体折射率。

在给定光轴角度的非线性晶体内,在同一相位匹配角下有多组不同频率的泵浦光与信号光满足相位匹配条件,如图 3 所示,图中 $2.1 \mu\text{m}$ 对应的曲线代表在同一相位匹配角(通常按光谱强度下降到最大值的 $1/e^2$ 处的波长来设计)下,符合完美相位匹配条件($\Delta k = 0$)所对应的不同泵浦光与信号光的组合,若泵浦光或信号光的频率偏离该曲线,则对应浅色区域。由上述 Δk 与 ω_3, ω_1 关系可知,整个彩色区域的横向或纵向的颜色强弱分布按照 $\text{sinc}^2(\Delta k L)$ 函数曲线变化,颜色越浅表示转换效率越低。中间深色区域表示了允许的相位失配范围。此外,图中不同颜色的斜线对应了不同波长的差频光,只有经过深色区域的波段才能够以

足够的转化效率被输出。除此之外,晶体长度 L 对相位失配可接收范围的影响也很大,若晶体长度减小,在相同参数下,转换效率 η 可能会有一定程度的下降,但对应的相位失配因子 Δk 则有更大的变化空间,这也意味着图 3 中整个深色区域范围将扩大,可以覆盖更多波段的差频光,所以脉内自差频产生的中红外光谱可以被拓宽。因此为拓宽产生的中红外光谱范围,尤其是在需要获得短脉冲中红外激光的情况下,非线性晶体需要较短的长度^[34-35]。

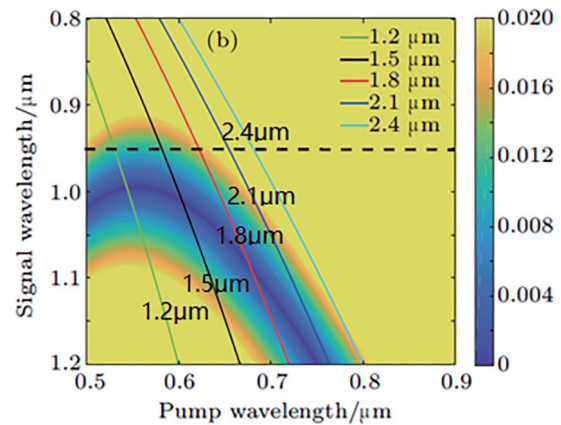


图 3 特定相位匹配角下的相位失配图^[35]

Fig. 3 Phase mismatch diagram at specific phase matching angles^[35]

除此之外,在特别的相位匹配条件下,所获得的差频光也能与驱动光再次进行差频,从而产生具有更多的波长成分的差频光,在选择合适的非线性晶体的情况下,最终这些不同波段的差频光重合叠加形成图 4(a)所示的宽带中红外光谱,此过程即为差频的级联过程。图 4(b)描述了这种级联光参量的过程,Wang 等^[16-20]进行了较为详细的阐述和实验论证。

除上述通过晶体双折射实现相位匹配之外,还可以采用准相位匹配以及随机相位匹配^[36]的方式通过脉内自差频产生宽光谱中红外激光。比如马普量子光学研究所的 Deng 等^[37]采用准相位匹配在掺 MgO 的 PPLN 晶体中实现脉内自差频,得到了光谱范围跨倍频程的种子光,并将其用在光参量啁啾脉冲放大(OPCPA)中;Zhang 等^[15]采用随机相位匹配在 ZnSe/ZnS 晶体中实现脉内自差频,得到了 $2.7 \sim 20 \mu\text{m}$ 的宽带中红外激光脉冲输出。

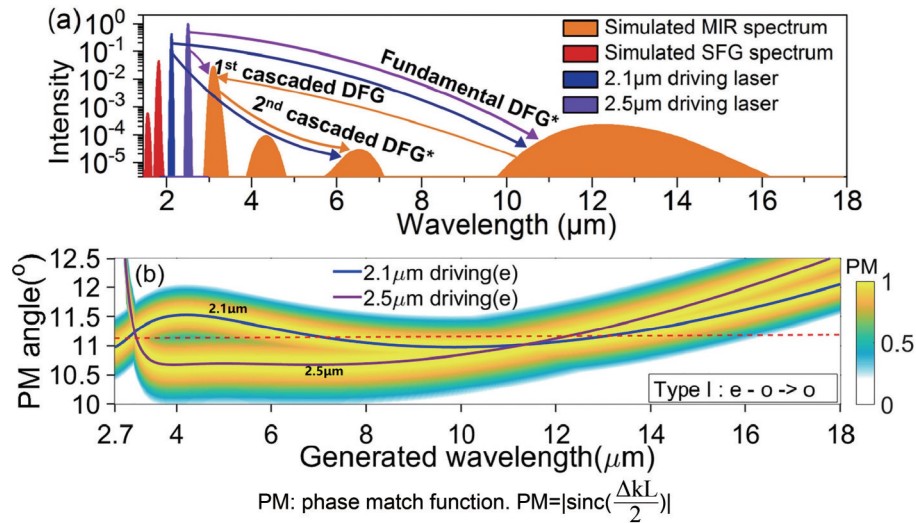


图4 级联光参量过程原理示意图和相位失配图。(a)级联光参量过程原理示意图^[20]；(b)级联光参量过程的相位失配图^[20]
 Fig. 4 Principle and phase mismatch diagrams of cascaded optical parametric process. (a) Principle of cascaded optical parametric process^[20]; (b) phase mismatch diagram of cascaded optical parametric process^[20]

3 脉内自差频产生中红外激光工作进展

3.1 基于钛宝石激光的脉内自差频实验进展

宽光谱的驱动光源是脉内自差频产生宽带中红外输出的必要条件之一,而掺钛蓝宝石激光因其可达到跨倍频程的光谱范围成为了一个研究热点,且掺钛蓝宝石飞秒激光能够通过锁模轻松获得少周期的飞秒脉冲输出。这些特性使得钛宝石激光最先成为用于脉内自差频的优异光源。2004年,马普量子光学研究所/日本分子科学研究所的Fuji等^[29]最早使用掺钛蓝宝石激光驱动脉内自差频,但是其输出在900 nm附近的近红外波段,输出功率也只有2 μW ,更适合作为放大器的种子源。在此基础上,有许多工作采取了脉内自差频与光参量放大(OPA)相结合的实验设计^[1, 30-31, 37-39],此类实验结构相似,经过放大之后能够得到中红外波段的激光输出,但是系统结构较为复杂。除这类工作外,直接利用钛宝石放大系统和非线性晶体产生中红外激光的方法也被广泛研究。

2013年,Wang等^[40]发表的相关工作中采用了图5(a)所示的钛宝石啁啾脉冲放大(CPA)系统作为驱动源。放大器输出脉宽为25 fs、能量为0.8 mJ、重复频率为1 kHz的可见-近红外脉冲,利用充入氩气的空芯光纤实现光谱的非线性展宽,再利用啁啾镜对脉冲宽度进行压缩,得到脉宽为5 fs、平均功率为430 mW的少周期放大光,将其作为脉内自差频的驱动光源^[41]。实验装置图如图5(b)所示。在非线性晶

体选择上面,他们采用了新型4H-SiC晶体,其对中红外光的高透波段为2.5~5.6 μm ,且具有高损伤阈值、宽参量带宽等优点。驱动光经过4H-SiC脉内自差频,利用Ge长波滤光片滤除输出激光中的驱动光谱成分,如图5(c)所示,获得的输出结果光谱范围为3.9~5.6 μm ,5.45 μm 处的最大能量为~200 nJ。

在类似的设计结构下,有许多使用其他非线性晶体的工作陆续被报道。2013年,德国马普量子光学研究所的Fattahi等^[34]利用0.5 mm的BBO晶体进行脉内自差频,最终得到了最大能量为41 μJ 、光谱范围为1.0~2.5 μm 的红外脉冲输出。2017年,中佛罗里达大学的Yin等^[42]使用BIBO晶体实现脉内自差频过程,采用I类相位匹配,经过不同厚度非线性晶体的替换实验后,在0.4 mm厚度下得到了光谱范围为1.8~4.2 μm 、能量为6.8 μJ 的脉冲;在0.8 mm厚度下得到光谱范围为1.8~3.5 μm 、能量为12.6 μJ 的脉冲,在实验中他们也发现了级联光参量的非线性差频过程。此外,他们还用KTA晶体进行实验,得到光谱范围为2.2~5.5 μm 、能量为0.8 μJ 的脉冲。类似工作也在2019年被报道,区别在于该工作使用了不同的方法拓展驱动光谱,西安电子科技大学的Huang等^[35]在实验中用特制的多个固体薄片取代了常用的空芯光纤,使用这种薄片展宽光谱的好处在于其透过率能达到85%以上,这意味着更少的能量损耗。他们以BBO作为非线性晶体获得了脉冲能量在纳焦量级、脉宽为11 fs、中心波长为1.8 μm 、光谱范围为1.3~2.5 μm 的红外输出。

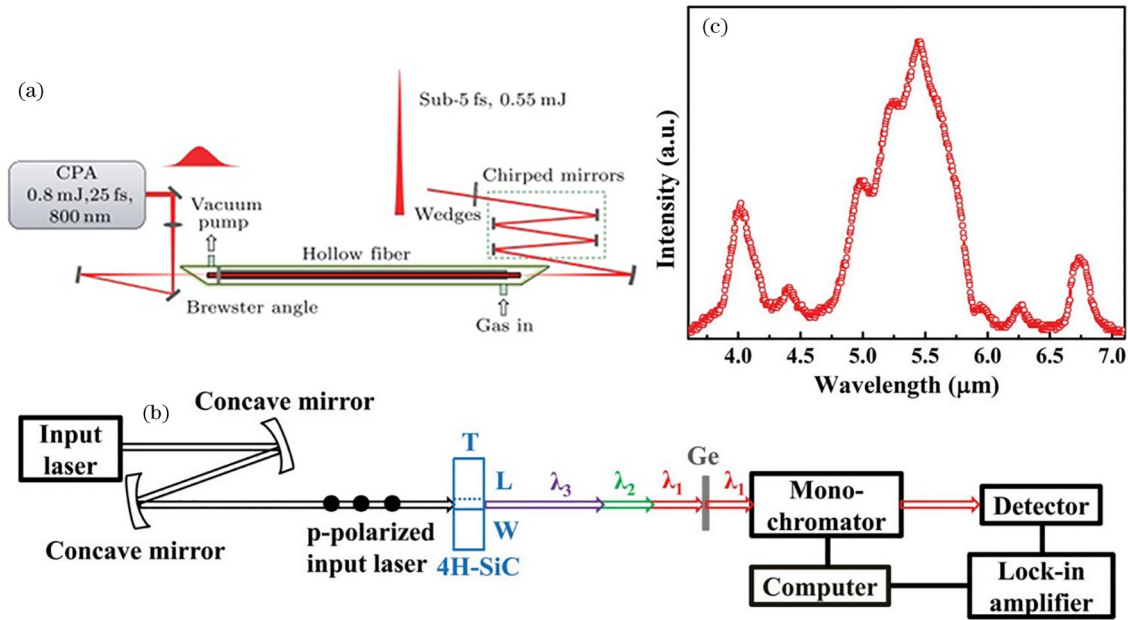


图5 钛宝石啁啾脉冲放大系统,钛宝石放大器驱动产生中红外输出装置结构图,以及中红外输出光谱。(a)钛宝石啁啾脉冲放大系统^[41]; (b)钛宝石放大器驱动产生中红外输出装置结构图^[40]; (c)中红外输出光谱^[40]

Fig. 5 Ti:sapphire chirp pulse amplification (CPA) system, structure diagram of MIR output generation by Ti:sapphire CPA system driving, and spectrum of MIR output. (a) Ti:sapphire CPA system^[41]; (b) structure diagram of MIR output generation by Ti:sapphire CPA system driving^[40]; (c) spectrum of MIR output^[40]

区别于上述报道的结构设计,东京大学的Kaneshima等^[43]在2016年设计了一个基于钛宝石放大器的双波长OPA系统作为脉内自差频的驱动光,其设计思路如图6所示。钛宝石放大器的输出光经4 mm厚的YAG晶体展宽光谱,再经过具有三阶色散的熔融石英,其群色散零点处于1270 nm,在时域上,各个光谱成分呈现出抛物线形。时域上被分离

的种子光经过OPA系统时,同一时间延迟的双波长光被同时放大,经过啁啾镜压缩脉宽后将光信号送入LGS(LiGaS₂)晶体进行脉内自差频。实验得到了脉冲能量为5 μJ、脉宽为70 fs、光谱范围为4.6~11 μm的中红外输出,如图7所示。该光谱范围是目前基于钛宝石激光驱动的脉内自差频产生中红外激光的最宽光谱。

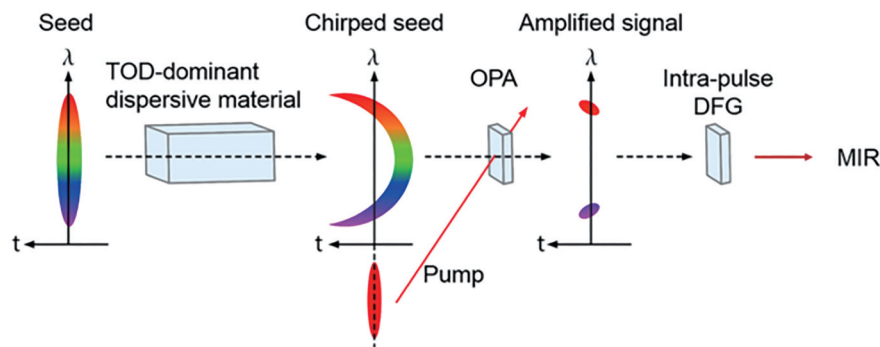


图6 双波长OPA与脉内自差频示意图^[43]

Fig. 6 Structure for dual-wavelength OPA and intra-pulse DFG^[43]

表1列出了基于钛宝石激光的脉内自差频工作的主要参数。首先,从实验方法上来看,表1中工作1~5均使用了类似的实验方法,都是将光谱展宽后的飞秒激光经过非线性晶体的差频产生中红外激

光,区别在于使用了不同非线性晶体,其中BBO晶体的转化效率最高,但是能得到的光谱范围较窄;而其他晶体的光谱范围得到了拓宽,但是转化效率极低。工作6使用了三阶色散将驱动光谱各组分呈

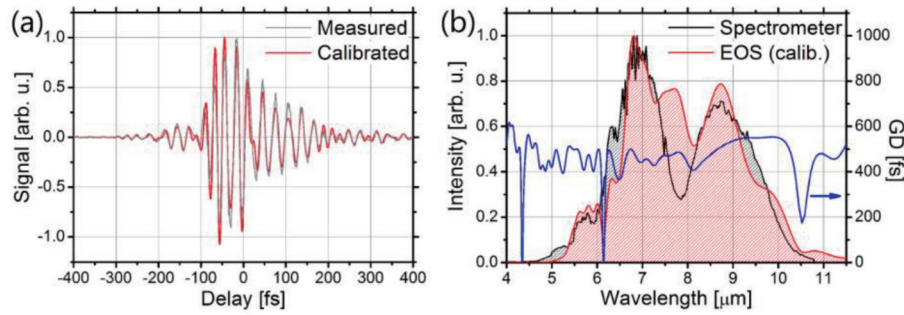


图7 中红外输出时域电场图和输出光谱。(a)中红外输出时域电场图^[43]; (b)中红外输出光谱^[43]

Fig. 7 Time domain electric field of MIR output and output spectra. (a) Time domain electric field of MIR output^[43]; (b) spectra of MIR output^[43]

表1 基于钛宝石激光的脉内自差频工作的主要参数

Table 1 Main parameters of intra-pulse DFG operations based on Ti:sapphire laser

Work	Institute	Intra-pulse DFG crystal	Range of MIR spectrum distribution / μm	Nonlinear conversion efficiency /%
1 ^[40]	Institute of Physics CAS	4H-SiC	3.9–5.6	0.05
2 ^[34]	Max-Planck Institute of Quantum Optics	BBO	1.0–2.5	4
3 ^[42]	University of Central Florida	BIBO	1.8–4.2	0.26
4 ^[42]	University of Central Florida	KTA	2.2–5.0	0.03
5 ^[35]	Xidian University	BBO	1.3–2.5	—
6 ^[43]	The University of Tokyo	LGS	4.6–11	0.07

抛物线型分离,并在驱动光进入非线性晶体前设置了两级OPA,在脉内自差频过程中使用LGS晶体,使得整个中红外输出光谱都有了明显的拓宽,但泵浦能量的转化效率仍然很低。

从以上基于掺钛蓝宝石飞秒激光作为驱动源的研究工作可看出,虽然钛宝石振荡器直接输出的激光拥有卓越的光谱特性,但是每项相关工作的实验设计都免不了啁啾脉冲放大系统、非线性展宽及脉冲压缩的加入,其原因就在于直接从掺钛蓝宝石振荡器获得的脉冲输出能量太低,并且驱动光处在可见至近红外波段,驱动光波段向中红外长波段的转换必然导致高量子亏损,非线性转化过程的转换效率较低。此外,以上列举的工作除使用LGS晶体外,得到的红外光谱范围上限不高,这是由于受非线性晶体的高透过率波段的限制,大部分的非线性晶体仍为氧化物,在中红外波段有较强的吸收,这个光谱范围不足以覆盖“分子指纹”光谱区。因此,近几年,研究人员也开始寻找结构更加紧凑的高功率激光器来替代钛宝石激光器作为驱动源,同时寻找拥有宽带高透过率的非线性晶体来获得宽光谱的中红外输出。

3.2 基于 1 μm 波段附近固体激光器的脉内自差频实验进展

处于 1 μm 波段的固体激光器经过多年发展已十

分成熟,目前被广泛应用的 1 μm 激光增益晶体主要为 Nd^{3+} 和 Yb^{3+} 掺杂,不过相比而言掺 Yb^{3+} 增益介质具有更宽的发射光谱,更适合用于锁模产生飞秒量级的脉冲。在众多掺 Yb^{3+} 晶体中, $\text{Yb}:\text{YAG}$ 晶体以其良好的导热性能和较高的损伤阈值,成为目前发展碟片激光器的最佳材料。碟片激光飞秒振荡器的直接输出能够达到几十瓦至上百瓦,且结构十分紧凑,能够大大简化脉内自差频实验驱动光源的结构^[44-45]。不过,对比钛宝石激光器而言,不论基于哪种掺 Yb^{3+} 增益介质的振荡器,输出激光光谱范围都太窄,仅为 30 nm 左右。因此,为获得宽带的中红外输出,非线性光谱展宽以及脉宽压缩的结构必不可少。

2015年,马普量子光学研究所的 Pupeza 等^[32]报道了基于 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 克尔透镜锁模碟片激光器自差频产生宽带中红外飞秒脉冲的工作,实验装置结构如图 8(a) 所示。碟片激光器输出中心波长为 1030 nm、脉宽为 250 fs、平均功率为 90 W 的近红外脉冲,经过光子晶体光纤展宽光谱和啁啾镜压缩脉宽之后,脉冲平均功率降低到 50 W,不过脉宽达到了 19 fs。非线性晶体采用了 1 mm 厚的 LGS 晶体,经过脉内自差频过程后直接获得的中红外输出平均功率为 103 mW,但其转换效率仅为 0.2%,重复频率为 100 MHz,光谱范围为 6.8~16.4 μm ,脉冲宽度少于两个光学周期,其输出光谱如图 8(b) 所

示。2017年,Huber等^[46]也利用Yb:YAG克尔透镜锁模碟片激光器在LGS晶体中完成了产生中红外脉冲的工作,不过为了获得最佳的激光稳定性,他

们采用的泵浦功率仅为70 W,最终只获得了平均功率为5 mW、光谱范围为8.4~11 μm 、脉宽为65 fs的脉冲输出,其转换效率仅为0.07%。

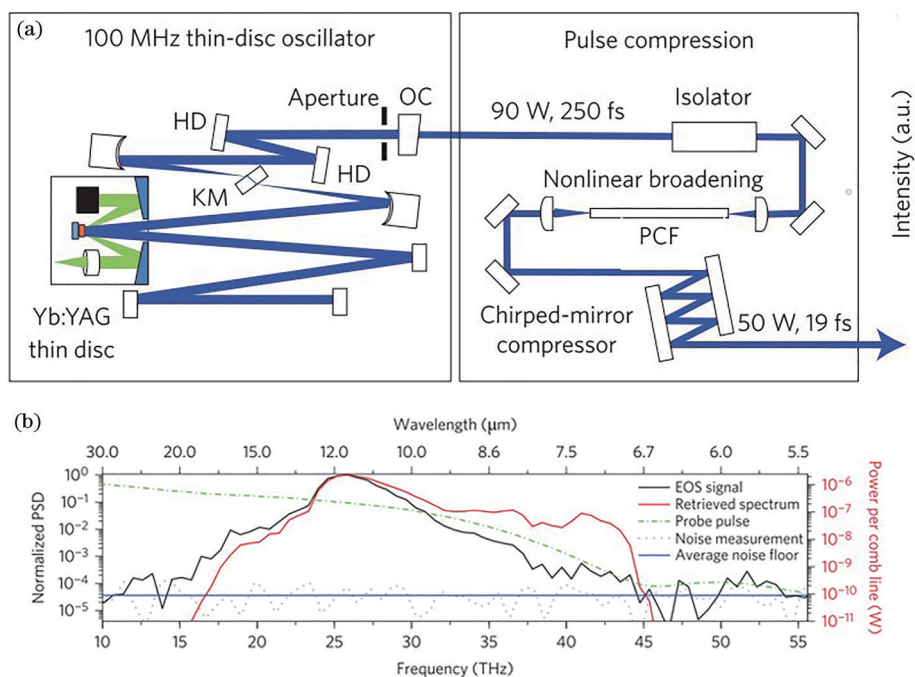


图8 碟片激光器驱动装置图和中红外输出光谱。(a) 碟片激光器驱动装置图^[32]; (b) 中红外输出光谱^[32]

Fig. 8 Structure of thin disk laser driving source, and spectrum of MIR output. (a) Structure of thin disk laser driving source^[32]; (b) spectrum of MIR output^[32]

2020年马普量子光学研究所报道了利用中红外飞秒脉冲进行生物分子探测的工作,也采用了Yb:YAG克尔透镜锁模碟片激光器作为驱动源产生宽带中红外飞秒脉冲的装置^[7]。该驱动源光谱中心位于1030 nm,输出的脉宽为220 fs、重复频率为28 MHz的脉冲经3级熔融石英后,光谱得到非线性展宽,并采用啁啾镜对脉宽进行压缩,得到的近红外脉冲的脉宽为16 fs,平均功率为60 W。所使用的非线性晶体为1 mm厚LGS晶体,经过脉内自差频得到的平均功率为100 mW,中心频率为1200 cm^{-1} (8.3 μm),光谱范围近一个倍频程的中红外脉冲如图9所示。

在1 μm 波段,除了利用Yb:YAG碟片激光器作为驱动源外,东京大学的Ishii等^[47]在2019年报道了一项用Yb:KGW啁啾脉冲放大器作为驱动源在KTA晶体中进行脉内自差频产生中红外的的工作。该项工作的实验设计将脉内自差频与OPA相结合。将脉宽为160 fs、脉冲能量为1 mJ、中心波长为1030 nm的Yb:KGW放大激光分为三路,分别用于自差频以及两级OPA,第一路光在到达KTA

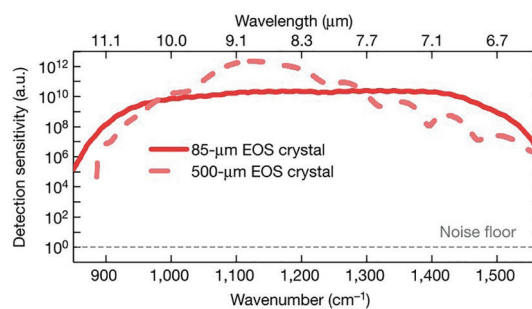


图9 Yb:YAG碟片激光器驱动脉内自差频中红外输出的光谱^[7]

Fig. 9 Spectrum of MIR output of intra-pulse DFG by Yb:YAG thin disk laser driving^[7]

(KTiOAsO_4)晶体之前通过两级多片固体被非线性展宽,将脉宽压缩至6.5 fs,获得的中红外信号光作为参量放大的种子光,经两级OPA得到光谱范围为2.7~3.8 μm 、能量为30 μJ 、脉宽为102 fs的中红外输出。

表2列出基于1 μm 波段固体激光器驱动的脉内自差频工作的主要参数,工作1~3均采用1 μm 的Yb:YAG碟片飞秒激光器作为驱动源,采用LGS

表 2 基于 1 μm 固体激光器的脉内自差频工作的主要参数Table 2 Main parameters of intra-pulse DFG operations based on solid femtosecond lasers operating at 1 μm

Work	Institute	Driving source	Intra-pulse DFG crystal	Range of MIR spectrum distribution / μm	Nonlinear conversion efficiency / %
1 ^[32]	Max-Planck Institute of Quantum Optics	Yb:YAG thin disk laser	LGS	6.8–16.4	0.2
2 ^[46]	University of Munich	Yb:YAG thin disk laser	LGS	8.4–11	–
3 ^[7]	Max-Planck Institute of Quantum Optics	Yb:YAG thin disk laser	LGS	6.5–11	0.16
4 ^[47]	The University of Tokyo	Yb:KGW amplifier	KTA	1.4–2	–

晶体作为脉内自差频晶体。碟片飞秒激光器的输出平均功率能达到上百瓦,不需要复杂的行波放大装置,整体结构更为紧凑。但碟片飞秒激光器直接输出的激光脉宽一般都在几百飞秒,光谱相对钛宝石激光器而言要窄很多(几十纳米宽度),因此仍需要进行额外的非线性光谱展宽和压缩。工作 1 和 2 均采用了光子晶体光纤拓展光谱,利用啁啾镜对色散进行补偿以实现脉宽压缩;工作 3 则采用基于熔融石英的多级非线性展宽与压缩,虽然结构更为复杂,但是获得的激光脉宽更短。工作 4 采用 Yb:KGW 固体飞秒激光放大器作为驱动源,利用 KTA 晶体作为脉内自差频晶体,这种方法由于没有额外的非线性光谱展宽过程,因而得到的中红外光谱范围更窄。

以上 1 μm 波段固体激光器驱动的脉内自差频实验中,碟片激光器的使用使得在驱动源功率提升的同时整体结构大大简化。另外,LGS 等晶体的宽带透光率使得脉内自差频获得的中红外输出光谱范围拓展到了 10 μm 以上,整体范围能覆盖甚至超过倍频程。不过,钛宝石激光器和 1 μm 波段固体激光器作为驱动源都存在一个无法避免的问题,驱动源波长从近红外拓展至中红外过程中的量子亏损使得它们的非线性转换效率都十分低。为了提高脉内自差频的转化效率,人们开始将驱动源波长延伸至更长的波段。

3.3 基于 2 μm 波段附近固体激光器的自差频实验进展

目前研究较为丰富的中红外固体激光器有 2 μm 波段掺 Ho³⁺ 固体激光器以及 2.5 μm 波段 Cr:ZnS/Cr:ZnSe 固体激光器。这两种激光器的增益介质都具有很宽的发射光谱,可以用于产生少光学周期的超短脉冲。在此波段下,性能良好的非线性晶体有 GaSe、AGSe(AgGaSe₂) 和 ZGP(ZnGeP₂) 等,由于其非氧化物的分子结构特征,中红外波段的多光子吸收效应被大大减弱,所以其在中红外波

段的透射光谱范围变得更宽。

2018 年,马普量子光学研究所的 Zhang 等^[14]最早将 2 μm 波段固体激光器用在脉内自差频实验中。他们利用中心波长在 2 μm 的 Ho:YAG 克尔透镜锁模碟片激光器进行了脉内自差频实验。其实验装置结构与图 8(a) 相似,实验中从碟片激光器输出的激光平均功率为 18.7 W,脉宽为 260 fs,重复频率为 77 MHz。在经过非线性晶体 GaSe 之前,2 μm 激光经过硅芯光子晶体光纤(PCF)后,其光谱被展宽,而 2 μm 波段在石英玻璃材料中处于反常色散区,因此光子晶体光纤也能用于压缩脉冲。最终聚焦至 GaSe 晶体上的泵浦光平均功率为 7 W,脉宽为 15 fs。采用第 I 类相位匹配时,自差频过程后得到的中红外输出平均功率为 24 mW,转换效率为 0.34%,光谱范围为 4.5~20 μm ,跨越了两个以上的倍频程。同年,捷克科学院物理研究所 Novák 等^[48]也采用了 2 μm 驱动源进行了相关实验,该实验中使用光源脉宽为 26 fs、重复频率为 1 kHz、中心波长为 2.1 μm 的光参量啁啾脉冲放大器,非线性晶体为 AGSe,具有 0.8~18 μm 的透光范围。基于第 II 类相位匹配得到中心波长位于 8.5 μm 、光谱范围为 7~10 μm 的中红外激光,转换效率为 0.8%。

2018 年以来,马普量子光学研究所/北京理工大学的 Wang 等^[16-18, 20]首先报道了几项利用 Cr:ZnS 飞秒激光器在 GaSe 晶体和 ZGP 晶体中进行脉内自差频产生超倍频中红外相干光的工作。不同于先前其他脉内自差频工作,他们的工作不仅进行了自差频相关实验,还通过数值模拟详细演示了级联脉内自差频的产生机理,清楚地将级联效应产生的各组分所对应的非线性过程分离了出来,这也是首次对级联脉内自差频过程的阐述。实验如图 10 所示,Cr:ZnS 克尔透镜锁模振荡器直接输出平均功率为 1 W、重复频率为 68.7 MHz、脉宽为 45 fs 的超短脉冲,经二级放大后,平均功率提升到了 3.35 W,且由于 ZnS 晶体本身的高非线性系数,输出光谱被进一

步展宽,经色散补偿后脉宽缩短至 28 fs。如图 11 所示,使用 GaSe 非线性晶体时,他们在 3.35 W 泵浦功率下获得了平均功率为 15 mW、脉宽为 32 fs、光谱范围为 2~17 μm 的超倍频中红外输出,波长大于 2.8 μm 部分的非线性转换效率达 0.45%^[20];采用类似的装置,2019 年研究人员采用 ZGP 晶体在 3.15 W

泵浦功率下获得的中红外输出平均功率为 125 mW ($>4.5 \mu\text{m}$) 和 300 mW ($>2.8 \mu\text{m}$),基于级联光参量过程的光谱得到了大幅拓宽,大于 2.8 μm 部分的光-光非线性转换效率达到了 9.5%,图 12 所示的光谱范围为 2.8~12.5 μm ^[17]。这也是到目前为止,通过脉内自差频激光产生宽光谱中红外输出的最高转换效率。

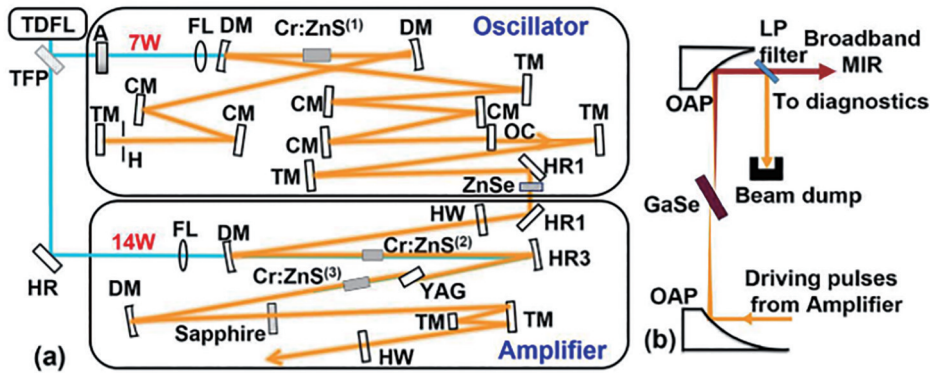


图 10 基于 Cr:ZnS 克尔透镜锁模激光器的脉内自差频产生装置图^[20]

Fig. 10 Structure of intra-pulse DFG based on Cr:ZnS Kerr-lens mode-locked laser^[20]

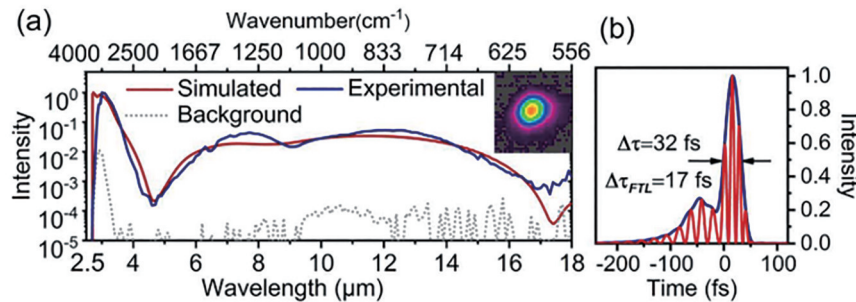


图 11 基于 GaSe 晶体得到的输出光谱。(a)数值模拟的输出光谱与实验测量的输出光谱^[20]; (b)中红外输出脉宽^[20]

Fig. 11 Output spectra obtained based on GaSe crystal. (a) Output spectra of numerical simulation and experiment^[20];

(b) pulse width of MIR output^[20]

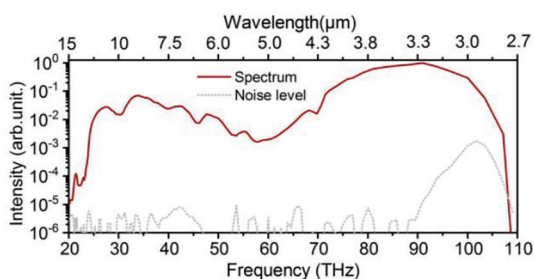


图 12 基于 ZGP 晶体得到的中红外输出光谱^[17]

Fig. 12 Spectrum of MIR output obtained based on ZGP crystal^[17]

2019 年 IPG 公司的 Vasilyev 等^[19]也发表了使用 Cr:ZnS 锁模激光器进行自差频产生超倍频中红外

相干光的实验工作。他们分别使用 ZGP 晶体和 GaSe 晶体进行了实验:4.5 W 泵浦功率下,使用 ZGP 晶体在 I 类相位匹配的条件下得到了平均功率为 150 mW、光谱范围为 5.8~12.5 μm 的中红外输出,该实验的转化效率超过了 3%;在 5.9 W 泵浦功率下,使用 GaSe 晶体采用第 I 类相位匹配得到了光谱范围为 4.3~16.6 μm 的结果,采用第 II 类相位匹配得到了光谱范围为 5.8~17.6 μm 的结果,平均功率为 13 mW。

除此之外,研究人员还对基于随机相位匹配的中红外激光产生过程进行了相关研究。2019 年, Zhang 等^[15]同样使用 Ho:YAG 克尔透镜锁模碟片激光器作为实验光源,实验方案与文献[14]中相

似,只是对非线性介质进行了新的尝试。他们基于随机准相位匹配理论^[49],使用多晶 ZnSe/ZnS,相对于常规的双折射晶体,使用多晶 ZnSe/ZnS 免去了对入射角和偏振方向的特定考虑,且这种材料在 0.55~20 μm 波段具有高透过率,十分适合用作自差频产生中红外激光。在 7 W 的泵浦功率下,使用 ZnSe 获得了平均功率为 16 mW、光谱范围为 2.7~20 μm 的中红外脉冲,使用 ZnS 得到了平均功率为 22 mW、光谱范围为 2.7~15 μm 的中红外脉冲^[15]。此外,他们还使用 Yb:YAG 碟片激光器作为光源在相同的非线性晶体中进行了实验,验证了 1 μm 泵浦下转换效率远低于使用 2 μm 泵浦时的结果。

表 3 列举了基于 2 μm 波段飞秒光源的脉内自差频实验,从驱动源来看,实验方案主要有两种:

表 3 基于 2 μm 固体激光器的脉内自差频产生工作的主要参数

Table 3 Main parameters of intra-pulse DFG operations based on solid femtosecond lasers operating at 2 μm

Work	Institute	Driving source	Intra-pulse DFG crystal	Range of MIR spectrum distribution / μm	Nonlinear conversion efficiency /%
1 ^[14]	Max-Planck Institute of Quantum Optics	Ho:YAG thin disk laser	GaSe	4.5-20	0.34
2 ^[15]	Max-Planck Institute of Quantum Optics	Ho:YAG thin disk laser	ZnSe/ZnS (Polycrystalline)	2.7-20 2.7-15	0.23 0.31
3 ^[48]	Institute of Physics of the Czech Academy of Sciences	2.1 μm OPCPA	AGSe	7-10	0.8
4 ^[16-18, 20]	Max-Planck Institute of Quantum Optics	Cr:ZnS mode locked laser	GaSe ZGP	2-17 2.8-12.5	0.45 9.5
5 ^[19]	IPG company	Cr:ZnS mode locked laser	GaSe ZGP	4.6-16.6 5.8-12.5	0.22 3

3.4 基于 3 μm 波段啁啾脉冲放大器的自差频实验进展

以进一步提高量子效率的实验思路,南洋理工大学的 Liu 等^[50]在 2019 年提出了利用 3 μm 光源驱动脉内自差频的工作。他们以一台 1 μm 的皮秒激光器为种子源,依次经过超连续谱产生(SCG)、四级 OPA 放大以及蓝宝石晶体的压缩之后得到了中心波长为 3 μm 、脉宽为 65 fs 的驱动光。驱动光经过半波片直接聚焦到 GaSe 晶体上,此时驱动脉冲能量约为 300 μJ 。采用第 II 类相位匹配,经过 GaSe 之后得到了脉冲能量为 1.06 μJ 、脉宽为 60 fs (对应 1.8 个光学周期)、光谱范围为 7~15 μm 的中红外脉冲。

对比使用 2 μm 固体激光器作为驱动源,同样是利用 GaSe 晶体作为非线性晶体,基于 3 μm 波段啁

Ho:YAG 碟片激光器和 Cr:ZnS/ZnSe 锁模激光器。这两种方案各有优劣,Ho:YAG 碟片振荡器的输出功率足够高,但是脉宽不够窄,需要增加光子晶体光纤等非线性光谱展宽和脉宽压缩部分;而使用 Cr:ZnS/ZnSe 锁模振荡器时,可以免去额外的非线性光谱展宽和脉冲压缩过程。非线性晶体均采用非氧化物晶体,它们在中红外输出光谱上得到很好的拓宽。此外,对于 2 μm 波段驱动的脉内自差频实验,由于量子效率的提升,其非线性转化效率对比 1 μm 波段的结果有了明显提升,尤其在使用 ZGP 晶体时非线性转化效率提升了近 2 个数量级,即使 2 μm 波段的振荡器的直接输出功率在瓦量级,得到的宽带中红外输出最高也能达到百毫瓦量级。

啁啾脉冲放大器的非线性转化效率达到了 0.76%,是其他工作的约 2~3 倍,这同样证明了采用长波波驱动光源能够提高非线性转化效率的结论。但该工作使用的 3 μm OPCPA 激光实验装置非常复杂。此外,该工作还通过实验验证了非线性晶体中的自相位调制也是脉内自差频过程中拓展中红外光谱的一个关键因素。

3.5 基于光纤激光器自差频产生中红外输出的进展

近些年研究人员对光纤激光器的研究热度非常高,原因在于其具有输出光束质量好、散热性能好以及结构紧凑稳定等优点。因此近两年也有许多使用光纤激光器作为驱动源经脉内自差频产生中红外输出的研究报道。光纤激光器作为驱动源存在的问题是驱动光谱范围不够宽,所以也需要额

外的非线性光谱展宽与脉宽压缩的过程。

2018 年,美国国家标准与技术研究院的 Timmers 等^[33]首先报道了掺 Er 光纤激光器在 OP-GaP 晶体中脉内自差频的研究工作。他们在实验中采用的掺 Er 光纤激光器的中心波长为 1.55 μm ,重复频率为 100 MHz,平均输出功率为 350 mW,输出光进入非线性晶体前被正色散非线性光纤拓宽光谱带宽至 600 nm,并用反常色散熔融石英楔压缩其脉宽至 10.6 fs。OP-GaP 晶体取向周期为 61.1 μm ,采用准相位匹配,最终获得的中红外输出的平均功率为 0.25 mW,光谱范围为 4~12 μm ,对应 1.5 个倍频程。该实验使用的驱动源功率较低,所以晶体中的非线性转换效率会比较低。2019 年,他们还利用掺 Er 光纤激光器并通过多个非线性晶体进行脉内自差频,获得超倍频光谱范围的中红外脉冲输出^[51]。实验上使用了 PPLN、OP-GaP 和 GaSe 晶体,获得了脉宽为 29 fs、光谱范围为 3~

27 μm 的中红外脉冲。2020 年,他们继续在 1.55 μm 波段进行相关实验,这项工作使用了重复频率为 10 GHz、脉宽小于 15 fs、中心波长为 1.55 μm 的电光调制(EO)频率梳作为驱动源,实验结构如图 13 所示,EO 频率梳光源经色散补偿并经掺 Er 光纤放大器的放大后得到的平均功率为 4 W,再通过 5 m 长的正常群速度色散光纤展宽光谱,之后利用 2 cm 长的 Si_3N_4 波导,在孤子自压缩效应下压缩脉宽,最终进入非线性晶体中的泵浦光平均功率为 1 W,脉冲能量为 100 pJ。他们使用 4 cm 长的 PPLN 晶体与 2 mm 长的 OP-GaP 晶体分别进行了实验。使用 PPLN 晶体时,在泵浦脉冲能量为 50 nJ 的情况下,获得了光谱范围为 3.1~4.3 μm 、平均功率为 50~100 μW 的中红外输出;使用 OP-GaP 晶体时,在 800 mW 的泵浦平均功率下,获得了光谱范围为 7~11 μm 、平均功率为 70~100 μW 的中红外输出^[52]。

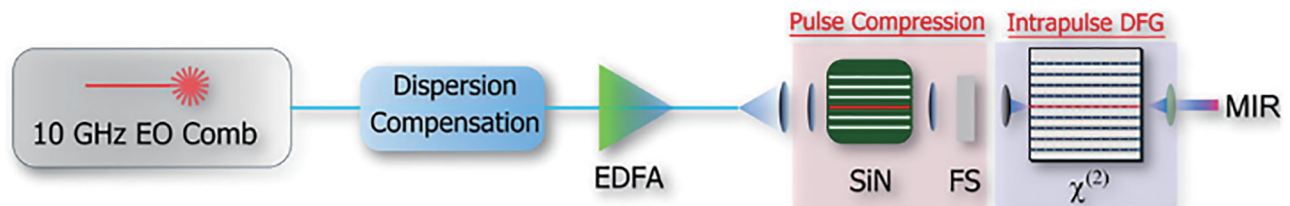


图 13 掺 Er 光纤放大器的脉内自差频实验结构图^[52]

Fig. 13 Experimental structure of intra-pulse DFG based on Er-doped fiber amplification^[52]

除 1.55 μm 波段外,常见光纤激光器的波段还有 1.9 μm ,该波段与 2 μm 十分接近,因此 GaSe 晶体也可以与该波段有良好的匹配。2018 年,耶拿大学的 Gaida 等^[53]报道了一项用中心波长为 1.9 μm 的掺 Tm 光纤激光器在 GaSe 晶体中自差频产生中红外输出的工作。他们通过改变多项参数进行了多次实验。光纤激光器输出激光的平均功率为 31.4 W,脉宽为 16 fs,在 I 类相位匹配条件下,脉冲重复频率为 400 kHz 时,得到的中红外输出平均功率为 157 mW,光谱范围为 3.7~18 μm ;当脉冲重复频率为 1.25 MHz 时,中红外输出激光的平均功率为 450 mW,光谱范围为 7.3~16.5 μm 。实验使用的泵浦功率为 25 W,当脉冲重复频率为 1.25 MHz 时,转化效率为 1.8%。2019 年,马普量子光学所的 Butler 等^[54-55]报道了利用输出波长为 1965 nm 的商用光纤激光器作为驱动源进行脉内自差频的工作。实验包含了脉内自差频和电光采样(EOS)过程,1965 nm 输出光被分为两束:一束经过展宽后的

平均功率为 4.5 W,脉宽为 13 fs,被用作 EOS 光源;另一束经过 PCF 光谱展宽和脉冲自压缩后,平均功率为 30 W,脉宽为 32 fs,脉冲聚焦在 GaSe 晶体上。采用 I 类相位匹配得到了平均功率为 0.5 W、脉宽为 43 fs、重复频率为 50 MHz、光谱范围为 6~18 μm 的超倍频程中红外输出。

表 4 总结了近几年利用光纤激光器进行脉内自差频的工作和相关参数,工作 1~3 的转换效率明显低于工作 4 和 5,其主要原因在于驱动光源的平均功率很低。从使用的晶体来看,波长更长的光纤激光器可以适配性能参数更优的 GaSe 晶体,不论在中红外输出的光谱范围上还是转化效率上都更有优势。

总体来讲,利用光纤激光器作为驱动光源进行脉内自差频实验具有结构上的优势,而且光纤激光器也逐渐成熟,飞秒光纤激光器较固体激光器而言更容易获得 30 W 以上的高功率输出,对增强非线性效应有很好的帮助。因此利用长波长飞

表 4 基于光纤激光器的脉内自差频产生工作的主要参数
Table 4 Main parameters of intra-pulse DFG operations based on fiber laser

Work	Institute	Driving source	Intra-pulse DFG crystal	Range of MIR spectrum distribution / μm	Nonlinear conversion efficiency / %
1 ^[33]	National Institute of Standards and Technology	Er: Fiber mode-locked laser	OP-GaP	4-12	0.07
2 ^[51]	National Institute of Standards and Technology	Er: Fiber mode-locked laser	PPLN, OP-GaP, GaSe	3-27	<0.013
3 ^[52]	Institute of Physics of the Czech Academy of Sciences	EO comb	PPLN, OP-GaP	3.1-4.3, 7-11	0.01, 0.012
4 ^[53]	University of Jena	Tm: Fiber laser	GaSe	3.7-18, 7.3-16.5	0.63, 1.8
5 ^[54-55]	Max-Planck Institute of Quantum Optics	1.9 μm fiber laser	GaSe	6-18	1.7

秒激光器作为驱动源是该领域今后发展的一个重要方向。

4 结 论

宽光谱飞秒中红外激光以其高亮度、宽光谱的特性在分子探测方面具有重要的应用价值。随着超快激光技术的快速发展,驱动源从早期波长在 0.8 μm 附近的掺钛蓝宝石飞秒激光器,1 μm 的碟片激光器,发展到波长为 2~3 μm 的固体及光纤飞秒激光器,驱动波长的增大配合光学性质优良的非线性晶体的使用使得光-光非线性转换效率提升了近百倍,结合级联光参量的非线性过程,单次脉内自差频的光-光非线性转换效率达到了近 10%。脉内自差频技术在近二十年的时间内取得了显著的进步,相信研究人员将针对脉内自差频产生中红外激光在以下方面开展进一步的研究。

1) 新型驱动光源。实验已证明长波段飞秒激光对非线性转化效率有显著提升,因此通过发展 2~3 μm 及更长波段的宽光谱飞秒驱动激光,可以有效提高非线性的转换效率。在固体激光器方面,今后的发展趋势是进一步提升中红外宽光谱的飞秒激光器的输出性能,2 μm 波段飞秒激光器相比 1 μm 飞秒激光器而言,在输出功率上有明显的不足,在碟片激光器或光参量放大的基础上,进一步提升驱动光输出功率将会是今后的重点发展方向。在光纤激光器方面,光纤激光器有集成化和高功率的优势,具有发展潜力,但是近两年工作一般只基于 1.55 μm 和 1.9 μm 两个波段,向更长波段拓展高功率飞秒光纤激光器将会是未来的发展趋势。

2) 新型中红外非线性晶体。寻找新的大非线性

系数、宽透过率范围的中红外晶体是研究中红外激光的重点之一,尤其是具有宽透过率范围的新型非氧化物材料。目前获得良好的实验结果的工作所使用的非线性晶体大多为单晶,对生产加工具有较高的要求,造价比较昂贵。而最近利用多晶材料配合随机准相位匹配技术也可以实现宽光谱中红外飞秒激光输出,基于多晶材料的低成本,寻找光学性能优异的多晶材料也将会是以后的发展方向之一。

3) 新型相位匹配技术。研究新型相位匹配技术如随机相位匹配技术、级联光参量相位匹配等。随机相位匹配技术、级联光参量技术等新型相位匹配技术有利于光谱的拓宽。基于 OP-GaP/PPLN 等准相位匹配技术产生飞秒中红外激光也是未来的发展方向,如周期渐变的 OP-GaP/PPLN 等,可以实现更高效率、更宽光谱的中红外激光输出。

4) 高亮度飞秒宽光谱激光。实现亮度能够与自由电子激光器相比拟的紧凑型台面中红外飞秒激光系统对激光光谱学、生命科学、化学等领域具有重要意义,需要综合新型驱动源、新型非线性材料及高效率相位匹配技术。

相信随着新型驱动光源、新型非线性晶体、新型相位匹配技术的发展,光谱宽度将会得到进一步拓展,非线性转换效率将会得到进一步提高,最终实现 2~20 μm 中红外全波段的全覆盖,实现可以与自由电子激光器亮度相比拟的新一代中红外激光光源。并且基于飞秒激光脉内自差频产生的中红外激光的载波包络相移为零,其天然为光学频率梳,其飞秒的时间特性使其可在超快分子动力学等方面具有重要的应用价值。相信随着脉内自差频技术的进一步发展,基于脉内自差频技术的中红外

飞秒激光器会在激光光谱学、生命化学等领域得到越来越广泛的应用。

参 考 文 献

- [1] Fuji T, Ishii N, Teisset C Y, et al. Parametric amplification of few-cycle carrier-envelope phase-stable pulses at 2.1 μm [J]. *Optics Letters*, 2006, 31(8): 1103-1105.
- [2] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(1): 163-234.
- [3] Kneipp K, Wang Y, Kneipp H, et al. Single molecule detection using surface-enhanced Raman scattering (SERS) [J]. *Physical Review Letters*, 1997, 78(9): 1667-1670.
- [4] Movasaghi Z, Rehman S, Rehman I U, et al. Raman spectroscopy of biological tissues[J]. *Applied Spectroscopy Reviews*, 2007, 42(5): 493-541.
- [5] Huber M, Trubetskov M, Hussain S A, et al. Optimum sample thickness for trace analyte detection with field-resolved infrared spectroscopy[J]. *Analytical Chemistry*, 2020, 92(11): 7508-7514.
- [6] Huber M, Schweinberger W, Trubetskov M, et al. Detection sensitivity of field-resolved spectroscopy in the molecular fingerprint region[C]//2017 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC), June 25-29, 2017, Munich. New York: IEEE Press, 2017: 17314478.
- [7] Pupeza I, Huber M, Trubetskov M, et al. Field-resolved infrared spectroscopy of biological systems [J]. *Nature*, 2020, 577(7788): 52-59.
- [8] Sorokin E, Tolstik N, Schaffers K I, et al. Femtosecond SESAM-modelocked Cr:ZnS laser[J]. *Optics Express*, 2012, 20(27): 28947-28952.
- [9] Tolstik N, Sorokin E, Sorokina I T, et al. Kerr-lens mode-locked Cr:ZnS laser[J]. *Optics Letters*, 2013, 38(3): 299-301.
- [10] Yang Y, Xu J Q, Hang Y, et al. Cr²⁺:ZnSe mid-infrared lasers[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2007, 44(5): 50-55.
杨勇, 徐剑秋, 杭寅. Cr²⁺:ZnSe 中红外激光器[J]. *激光与光电子学进展*, 2007, 44(5): 50-55.
- [11] Zhang J W, Mak K F, Pronin O, et al. Kerr-lens mode-locked 2 μm thin-disk lasers[J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2018, 24(5): 1-11.
- [12] Zhang J W, Schulze F, Mak K F, et al. High-power, high-efficiency Tm:YAG and Ho:YAG thin-disk lasers[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2018, 12(3): 1700273.
- [13] Fang C, Wang S B, Hui Y L, et al. Progress on erbium-doped mid-infrared laser[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2019, 56(18): 180002.
方聪, 王思博, 惠勇凌, 等. 掺铒中红外激光器的进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2019, 56(18): 180002.
- [14] Zhang J W, Mak K F, Nagl N, et al. Multi-mW, few-cycle mid-infrared continuum spanning from 500 to 2250 cm^{-1} [J]. *Light: Science & Applications*, 2018, 7(2): 17180.
- [15] Zhang J W, Fritsch K, Wang Q, et al. Intra-pulse difference-frequency generation of mid-infrared (2.7–20 μm) by random quasi-phase-matching[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(12): 2986-2989.
- [16] Wang Q, Zhang J W, Kessel A, et al. Complete mid-infrared coverage (2–20 μm) via cascaded parametric processes[C]//Laser Congress 2018 (ASSL), November 4-8, 2018, Boston, Massachusetts, United States. Washington, D.C.: OSA, 2018: ATu6A.4.
- [17] Wang Q, Zhang J W, Nagl N, et al. Highly efficient broadband mid-infrared generation (2.8–12.5 μm) based on a compact Cr:ZnS laser[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: 19147957.
- [18] Wang Q, Zhang J W, Nagl N, et al. Four-octave simultaneous infrared spectral coverage (2–16.5 μm) based on a compact Cr:ZnS laser[C]//8th EPS-QEOD Europhoton Conference, September 7, 2018, Barcelona, Spain. Mulhouse: EPS, 2018: FrA1.6
- [19] Vasilyev S, Moskalev I S, Smolski V O, et al. Super-octave longwave mid-infrared coherent transients produced by optical rectification of few-cycle 2.5 μm pulses[J]. *Optica*, 2019, 6(1): 111-114.
- [20] Wang Q, Zhang J W, Kessel A, et al. Broadband mid-infrared coverage (2 – 17 μm) with few-cycle pulses via cascaded parametric processes[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(10): 2566-2569.
- [21] Kubat I, Petersen C R, Møller U V, et al. Thulium pumped mid-infrared 0.9–9 μm supercontinuum generation in concatenated fluoride and chalcogenide glass fibers[J]. *Optics Express*, 2014, 22(4): 3959-3967.
- [22] Pigeon J J, Tochitsky S Y, Gong C, et al. Supercontinuum generation from 2 to 20 μm in GaAs

- pumped by picosecond CO₂ laser pulses[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(11): 3246-3249.
- [23] Xie S R, Tolstik N, Travers J C, et al. Coherent octave-spanning mid-infrared supercontinuum generated in As₂S₃-silica double-nanospike waveguide pumped by femtosecond Cr:ZnS laser[J]. *Optics Express*, 2016, 24(11): 12406-12413.
- [24] Chen L Z, Wen S C. Recent advances and methods of optical parametric generation and amplification for tunable ultra-short mid-infrared pulse[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2011, 48(8): 081902.
陈列尊, 文双春. 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[J]. *激光与光电子学进展*, 2011, 48(8): 081902.
- [25] Li B W, Wu J M, Xu M H, et al. Study on widely tunable mid-infrared difference-frequency generation based on passive synchronization[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47(11): 1115001.
李博文, 武佳美, 徐明航, 等. 基于被动同步的宽调谐中红外差频技术研究[J]. *中国激光*, 2020, 47(11): 1115001.
- [26] Xu M H, Wu J M, Li B W, et al. Efficient mid-infrared difference-frequency generation technology based on passive all-optical synchronization[J]. *Acta Optica Sinica*, 2020, 40(20): 2036001.
徐明航, 武佳美, 李博文, 等. 基于被动全光同步的高效率中红外差频产生技术研究[J]. *光学学报*, 2020, 40(20): 2036001.
- [27] Steinle T, Mörz F, Steinmann A, et al. Ultra-stable high average power femtosecond laser system tunable from 1.33 to 20 μm[J]. *Optics Letters*, 2016, 41(21): 4863-4866.
- [28] Smolski V, Vasilyev S, Moskalev I, et al. Sub-watt femtosecond laser source with the spectrum spanning 3–8 μm[C]//*Laser Congress 2017 (ASSL, LAC)*, October 1-5, 2017, Nagoya, Aichi. Washington, D. C.: OSA, 2017: AM4A.6.
- [29] Fuji T K, Apolonski A, Krausz F, et al. Self-stabilization of carrier-envelope offset phase by use of difference-frequency generation[J]. *Optics Letters*, 2004, 29(6): 632-634.
- [30] Huang S W, Cirmi G, Moses J, et al. High-energy pulse synthesis with sub-cycle waveform control for strong-field physics[J]. *Nature Photonics*, 2011, 5(8): 475-479.
- [31] Ishii N, Kitano K, Kanai T, et al. Carrier-envelope-phase-preserving, octave-spanning optical parametric amplification in the infrared based on BiB₃O₆ pumped by 800 nm femtosecond laser pulses[J]. *Applied Physics Express*, 2011, 4(2): 022701.
- [32] Pupeza I, Sánchez D, Zhang J, et al. High-power sub-two-cycle mid-infrared pulses at 100 MHz repetition rate[J]. *Nature Photonics*, 2015, 9(11): 721-724.
- [33] Timmers H, Kowligy A, Lind A, et al. Molecular fingerprinting with bright, broadband infrared frequency combs[J]. *Optica*, 2018, 5(6): 727-732.
- [34] Fattahi H, Schwarz A, Keiber S, et al. Efficient, octave-spanning difference-frequency generation using few-cycle pulses in simple collinear geometry[J]. *Optics Letters*, 2013, 38(20): 4216-4219.
- [35] Huang H D, Hu C Y, He H J, et al. Broadband mid-infrared pulse via intra-pulse difference frequency generation based on supercontinuum from multiple thin plates[J]. *Chinese Physics B*, 2019, 28(11): 114203.
- [36] Liu K F, Zhong K, Yao J Q, et al. Research progress on random quasi-phase matching in polycrystalline materials[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2020, 57(21): 210001.
刘科飞, 钟凯, 姚建铨. 多晶材料随机准相位匹配研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2020, 57(21): 210001.
- [37] Deng Y P, Schwarz A, Fattahi H, et al. Carrier-envelope-phase-stable, 1.2 mJ, 1.5 cycle laser pulses at 2.1 μm[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(23): 4973-4975.
- [38] Moses J, Huang S W, Hong K H, et al. Highly stable ultrabroadband mid-IR optical parametric chirped-pulse amplifier optimized for superfluorescence suppression[J]. *Optics Letters*, 2009, 34(11): 1639-1641.
- [39] Hong K H, Huang S W, Moses J, et al. High-energy, phase-stable, ultrabroadband kHz OPCPA at 2.1 μm pumped by a picosecond cryogenic Yb:YAG laser[J]. *Optics Express*, 2011, 19(16): 15538-15548.
- [40] Wang S C, Zhan M J, Wang G, et al. 4H-SiC: a new nonlinear material for midinfrared lasers[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2013, 7(5): 831-838.
- [41] Zhang W, Teng H, Yun C X, et al. Generation of sub-2 cycle optical pulses with a differentially pumped hollow fiber[J]. *Chinese Physics Letters*, 2010, 27(5): 054211.
- [42] Yin Y C, Ren X M, Chew A, et al. Generation of octave-spanning mid-infrared pulses from cascaded second-order nonlinear processes in a single crystal[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1): 10097.
- [43] Kaneshima K, Ishii N, Takeuchi K, et al. Generation of carrier-envelope phase-stable mid-infrared pulses via

- dual-wavelength optical parametric amplification[J]. Optics Express, 2016, 24(8): 8660-8665.
- [44] Innerhofer E, Südmeyer T, Brunner F, et al. 60 W average power in 810 fs pulses from a thin-disk Yb: YAG laser[J]. Optics Letters, 2003, 28(5): 367-369.
- [45] Saraceno C J, Emaury F, Heckl O H, et al. 275 W average output power from a femtosecond thin disk oscillator operated in a vacuum environment[J]. Optics Express, 2012, 20(21): 23535-23541.
- [46] Huber M, Schweinberger W, Stutzki F, et al. Active intensity noise suppression for a broadband mid-infrared laser source[J]. Optics Express, 2017, 25(19): 22499-22509.
- [47] Ishii N, Xia P Y, Kanai T, et al. Optical parametric amplification of carrier-envelope phase-stabilized mid-infrared pulses generated by intra-pulse difference frequency generation[J]. Optics Express, 2019, 27(8): 11447-11454.
- [48] Novák O, Krogen P R, Kroh T, et al. Femtosecond 8.5 μm source based on intrapulse difference-frequency generation of 2.1 μm pulses[J]. Optics Letters, 2018, 43(6): 1335-1338.
- [49] Raybaut M, Haïdar R, Kupecek P, et al. Random quasi phase-matching in bulk polycrystalline zinc selenide[C]//Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science and Photonic Applications Systems Technologies, May 22-27, 2005, Baltimore, Maryland, United States. Washington, D.C.: OSA, 2005: CWE6.
- [50] Liu K, Liang H K, Li W K, et al. Microjoule sub-two-cycle mid-infrared intrapulse-DFG driven by 3 μm OPCPA[J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2019, 31(21): 1741-1744.
- [51] Kowligy A S, Timmers H, Lind A J, et al. Infrared electric-field sampled frequency comb spectroscopy [J]. Science Advances, 2019, 5(6): 7.
- [52] Kowligy A S, Carlson D R, Hickstein D D, et al. Mid-infrared frequency combs at 10 GHz[J]. Optics Letters, 2020, 45(13): 3677-3680.
- [53] Gaida C, Gebhardt M, Heuermann T, et al. Watt-scale super-octave mid-infrared intrapulse difference frequency generation[J]. Light: Science & Applications, 2018, 7: 94.
- [54] Butler T P, Gerz D, Hofer C, et al. Watt-scale 50-MHz source of single-cycle waveform-stable pulses in the molecular fingerprint region[J]. Optics Letters, 2019, 44(7): 1730-1733.
- [55] Butler T P, Lilienfein N, Xu J, et al. Multi-octave spanning, watt-level ultrafast mid-infrared source[J]. Journal of Physics: Photonics, 2019, 1(4): 044006.