

引用格式: CAO Hua-bao, WANG Hu-shan, YUAN Hao, *et al.* Research Progress of Mid-infrared Femtosecond Sources Based on Optical Parametric Amplification (Invited)[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2020, 49(11):1149005

曹华保,王虎山,袁浩,等. 基于光参量放大的中红外飞秒光源进展(特邀)[J]. 光子学报, 2020, 49(11):1149005

基于光参量放大的中红外飞秒光源进展(特邀)

曹华保¹, 王虎山¹, 袁浩^{1,2}, 刘鑫^{1,2}, 黄沛¹, 王屹山¹, 赵卫¹, 付玉喜¹

(1 中国科学院西安光学精密机械研究所 瞬态光学与光子技术国家重点实验室, 西安 710119)

(2 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 利用光参量放大可以产生大带宽、波长可调、载波包络相位稳定和高平均功率的中红外飞秒光源. 首先介绍了中红外波段的光参量放大技术, 主要包括宽带光参量放大和色散管理技术. 随后回顾了使用不同波长激光泵浦的飞秒中红外光参量放大系统取得的主要进展, 最后对中红外飞秒光参量放大系统的发展进行了展望.

关键词: 非线性光学; 激光; 中红外; 超短脉冲; 参量放大

中图分类号: O437

文献标识码: A

doi: 10.3788/gzxb20204911.1149005

Research Progress of Mid-infrared Femtosecond Sources Based on Optical Parametric Amplification (Invited)

CAO Hua-bao¹, WANG Hu-shan¹, YUAN Hao^{1,2}, LIU Xin^{1,2}, HUANG Pei¹,
WANG Yi-shan¹, ZHAO Wei¹, FU Yu-xi¹

(1 State Key Laboratory of Transient Optics and Photonics, Institute of Optics and Precision Mechanics of CAS, Xi'an 710119, China)

(2 University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: The tunable mid-infrared femtosecond sources with broadband, tunable wavelength, stable carrier envelope phase and high average power are achievable through optical parametric amplification. In this review, the key techniques of optical parametric amplification systems working in the mid-infrared range are introduced, including but not limited, broadband optical parametrical amplification and dispersion manging techniques. After that, the research progress and development prospect of the mid-infrared femtosecond source based on optical parametric amplification are presented and discussed.

Key words: Nonlinear optics; Lasers; Mid-infrared; Ultrashort pulses; Parametric amplification

OCIS Codes: 190.4410; 320.7160; 140.3580

0 引言

随着激光技术的发展,其输出波长由常见的可见光和近红外波段向中红外光波段扩展,随之而来的是中红外光源在光谱学、遥感、医疗、通信和基础物理研究等方面的广泛应用.近年来,大能量中红外超短光源成为了前沿研究方向,该类光源的出现为先进的超快分子光谱学研究,强场条件下的光与物质相互作用等

基金项目: 西安市科技计划重大科研平台建设项目(No. 202005YK01), 陕西省自然科学基金研究计划(No. 2019JCW-03), 中国科学院重大科技基础设施预研项目(No. J20-021-III), 西安光学精密机械研究所自主部署重大项目(No. S19-020-III)

第一作者(通讯作者): 曹华保(1984—), 男, 副研究员, 博士, 主要研究方向为高平均功率超短激光器技术. Email: caohuabao@opt.ac.cn

通讯作者: 王屹山(1970—), 男, 研究员, 博士, 主要研究方向为飞秒光频梳、高功率光纤激光技术和超连续谱技术. Email: yshwang@opt.ac.cn

赵卫(1963—), 男, 研究员, 博士, 主要研究方向为高功率激光技术、超快激光技术和超快光电子学. Email: weiz@opt.ac.cn

付玉喜(1981—), 男, 研究员, 博士, 主要研究方向为中红外飞秒激光和 X 射线光源研发. Email: fuyuxi@opt.ac.cn

收稿日期: 2020-09-01; 录用日期: 2020-10-07

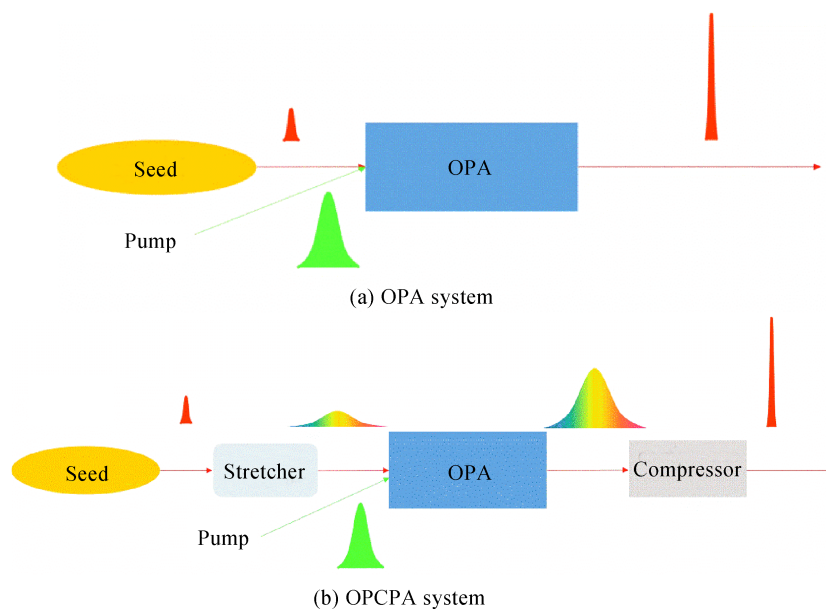
<http://www.photon.ac.cn>

研究领域带来了新的契机^[1-4].在光谱学应用中,由于一些重要的分子吸收指纹处在中红外波段,如丙酮、甲烷、甲醇的吸收波长分别为 $7.3\ \mu\text{m}$ 、 $7.8\ \mu\text{m}$ 、 $9.6\ \mu\text{m}$,因此通过超短脉宽的中红外脉冲可以实现分辨的中红外光谱学研究,能够为分子结构和动态研究提供多维度信息^[5].在强场物理研究领域,中红外超短脉冲在与物质相互作用时,电子隧穿电离可以在较低的光强水平下发生,因此在光与固体作用的强场实验研究中,可以有效避免材料损伤和多光子吸收.此外,中红外脉冲在激光尾波加速电子^[6]、光电场直接加速电子^[7]以及通过与惰性气体(如氦、氖、氩等)作用产生全相干X射线超短脉冲等研究领域具有优势.在基于高次谐波过程产生阿秒脉冲的研究早期,成熟的钛宝石激光系统一直作为阿秒脉冲驱动光源的主要选择.然而,该驱动光的波长将阿秒脉冲光子能量限制在 $100\ \text{eV}$ 以下的紫外波段,无法达到应用范围更广的软X射线波段,而使用中红外飞秒激光作为驱动源,可以获得光子能量更高的阿秒脉冲.

中红外脉冲可通过光纤和固体激光器技术、量子级联激光器技术以及光参量放大等产生:在中红外波段的激光材料较为缺乏, Ho:YLF、Tm:YAG、Fe:ZnSe、Cr:ZnSe、Cr:ZnS等激光介质的输出波长不超过 $3\ \mu\text{m}$ ^[8-12],并且其增益带宽在输出飞秒脉宽方面存在困难;量子级联激光器也可以直接产生中红外脉冲^[13],但是其输出脉宽同样受限于谱宽;光参量放大过程可以通过二阶非线性效应将短波长泵浦光转换至中红外波段,具有波长可调、增益带宽大、载波包络相位(Carrier Envelope Phase, CEP)稳定可控和热效应小等优点,能够获得高重频及短脉宽的中红外飞秒光源.本文首先介绍中红外波段的光参量放大系统关键组成部分以及基于光参量放大的中红外飞秒光源的研究进展,最后对中红外飞秒光参量放大系统的发展动向进行了总结和展望.

1 中红外飞秒光参量啁啾脉冲放大技术

光参量放大系统包括种子源和光参量放大器,种子源提供具有一定能量和波长范围的脉冲,随后光参量放大器提供增益,增大脉冲能量(见图1(a)).由于脉冲宽度较小,光参量放大系统的输出脉冲能量受到元件损伤阈值和非线性效应的限制,因此多用于对脉冲能量要求较低的应用领域,如超快光谱学研究等.而在强场物理研究领域,如电子加速,高次谐波产生等,需要毫焦级脉冲能量,此时就需要采用光参量啁啾脉冲放大技术(Optical Parametric Chirped Pulse Amplification, OPCPA)或者双啁啾脉冲光参量放大技术(Dual-Chirped Optical Parametrical Amplification, DC-OPA).脉冲在放大前引入群速度色散,从而增加脉宽.脉冲在不同时间点的瞬时频率不同,形成啁啾脉冲.OPCPA和DC-OPA系统将啁啾脉冲放大技术与光参量放大器相结合^[14],能够在支持大脉冲能量的同时避免元件损伤以及有害非线性效应,如图1(b)、(c)所示.两者不同的是



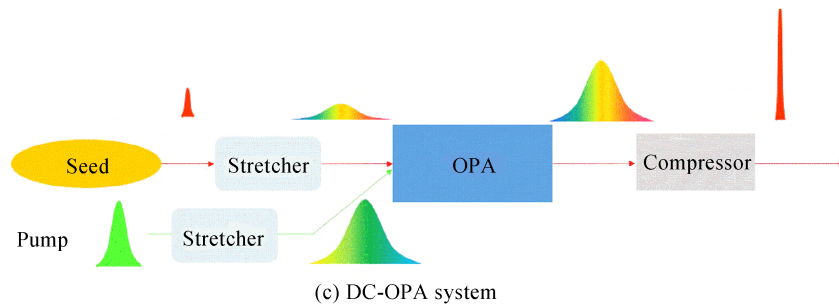


图1 OPA、OPCPA和DC-OPA系统示意图

Fig.1 The principle of OPA, OPCPA and DC-OPA

OPCPA系统只有种子为啁啾光,而DC-OPA系统的泵浦光也需要经过脉冲展宽形成啁啾光^[15].为了实现大带宽的参量放大,SCHMIDT B等提出了频率域的光参量放大技术(Frequency Domain Optical Parametrical Amplification, FOPA)^[16],由于该技术主要用于近红外波段脉冲放大,本文不对其进行详细介绍.

1.1 光参量放大器

OPA、OPCPA以及DC-OPA系统的核心部分是光参量放大,光参量放大过程是二阶非线性过程(见图2).泵浦光和信号光入射至二阶非线性晶体中,一个高能光子(泵浦光)转换为光子能量相对较小的两个光子(信号光和闲频光),发生频率转换过程,使信号光得到放大.值得指出的是如果该二阶非线性过程的目的是获得闲频光,那么这个过程通常也被称为差频产生过程(Difference-Frequency Generation, DFG),本文将将其归类于光参量放大.光参量放大过程需满足能量守恒和动量守恒^[17],即

$$\begin{cases} \omega_3 = \omega_2 + \omega_1 \\ \Delta k = k_3 - k_2 - k_1 = 0 \end{cases} \quad (1)$$

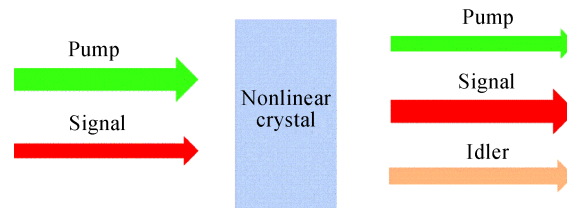


图2 光参量放大过程示意

Fig.2 Schematic of an optical parametric amplifier

式中, ω_3 、 ω_2 和 ω_1 分别为泵浦光、信号光和闲频光的频率,而 k_3 、 k_2 和 k_1 分别为泵浦光、信号光和闲频光的波矢.在动量守恒情况下,各光波之间能够实现相位匹配,于是新产生的信号光波能够和输入信号光波相干增强,从而实现脉冲放大.实现相位匹配的方式主要有准相位匹配、温度相位匹配和角度相位匹配三种^[17].角度相位匹配根据各光束偏振关系可分I型和II型相位匹配.角度相位匹配因波矢方向的相互关系又可区分为共线相位匹配和非共线相位匹配,如图3所示.

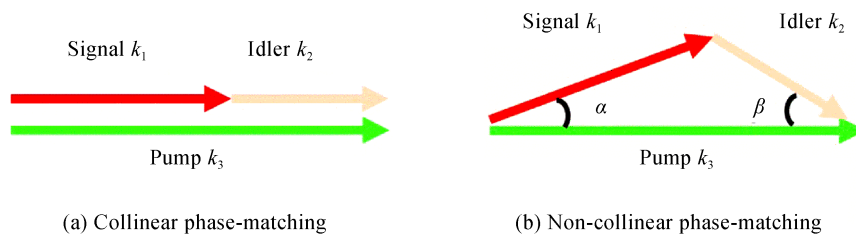


图3 共线相位匹配与非共线相位匹配示意

Fig.3 Collinear and non-collinear phase-matching geometries

非共线相位匹配时与泵浦波矢方向垂直和平行的中心波长处的波矢失配分量 Δk_{\perp} 和 $\Delta k_{//}$ 计算公式为

$$\begin{cases} \Delta k_{\perp}(\omega_0) = k_1(\omega_0)\sin\alpha - k_2\sin\beta(\omega_0) \\ \Delta k_{//}(\omega_0) = k_3 - k_1(\omega_0)\cos\alpha - k_2\cos\beta(\omega_0) \end{cases} \quad (2)$$

式中, ω_0 为中心频率, α 和 β 分别为信号光、闲频光与泵浦光夹角(见图 3(b)). 将相位失配量对 ω_0 进行泰勒展开, 当满足一阶导数为零时, 可以得到

$$v_{g1}(\omega_0) = v_{g2}(\omega_0)\cos[\alpha + \beta(\omega_0)] \quad (3)$$

式中, $v_{g1}(\omega_0)$ 和 $v_{g2}(\omega_0)$ 分别为信号光和闲频光群速度. 可见当闲频光群速度在信号光波矢方向上的分量与信号光群速度相等时, 相位失配量可在较宽光谱范围内保持接近零的值, 被称为宽带相位匹配. 当相位失配量对角频率的二阶导数为零时, 需满足

$$-\left.\frac{\partial^2 k_1(\omega)}{\partial \omega^2}\right|_{\omega_0} \cos[\alpha + \beta(\omega_0)] - \left.\frac{\partial^2 k_2(\omega)}{\partial \omega^2}\right|_{\omega_0} + \frac{\tan^2[\alpha + \beta(\omega_0)]}{k_2(\omega_0)v_{g2}^2(\omega_0)} = 0 \quad (4)$$

此时相位失配量可以在更宽光谱范围内保持接近零的值, 从而实现超宽带相位匹配^[18]. 在确定泵浦光(或信号光)波长的前提下, 虽然进行相位匹配时具有 3 个自由参数, 包括信号光(或泵浦光)波长、相位匹配角和非共线角, 但是并不能保证方程(1, 3, 4)有解, 需要考察该晶体的色散特性, 以确定是否存在超宽带相位匹配. LIN Y 等选择了简并共线结构^[19], 因此可以直接满足式(3). 然后选择信号光中心波长为零群速度色散(Group Velocity Dispersion, GVD)波长(约 1 400 nm), 那么就可以满足式(4). 最后通过选择合适的相位匹配角度(满足式(1))实现了从 1 000 nm 到 2 400 nm 的超宽带相位匹配(见图 4), 获得 0.73 个光周期的亚光周期脉冲.

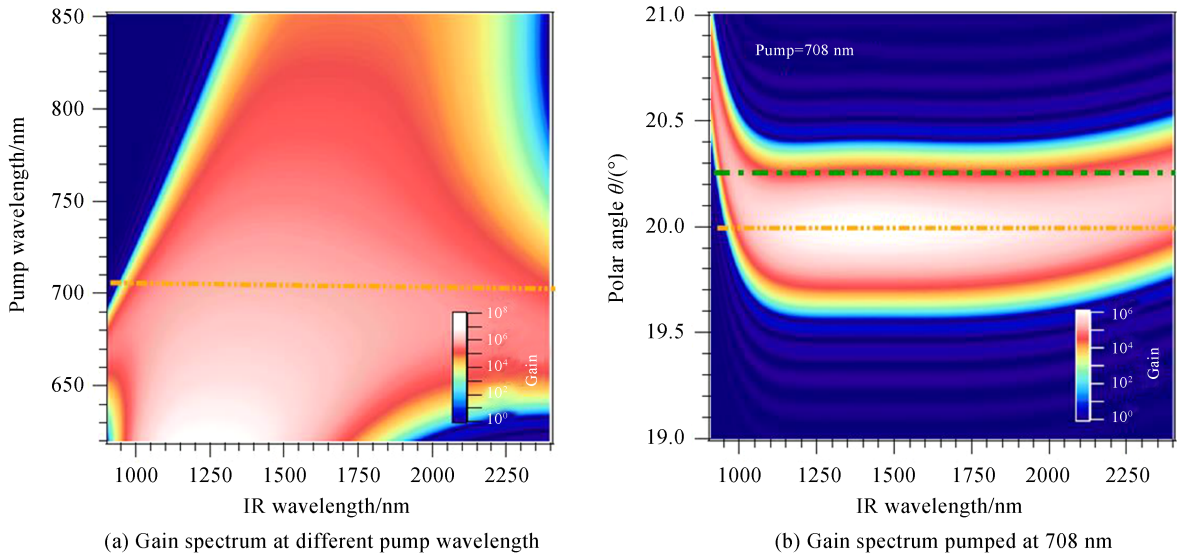


图 4 在 I 型相位匹配下, 3 mm BBO 不同泵浦波长的增益谱和 708 nm 泵浦时不同相位匹配角时增益谱^[19]

Fig. 4 Calculated gain spectrum of a 3 mm BBO under the type-I phase-matching condition, and the calculated gain spectrum at the pump wavelength of 708 nm with different phase-matching angle^[19]

搭建光参量放大器首先需要选择合适的非线性晶体, 除了考虑相位匹配之外, 也要考虑材料的透光范围、带隙能量、非线性系数以及损伤阈值等. 表 1 为一些常用非线性晶体的参数, 从透光范围来看, LiNbO₃、KNbO₃、KTiOAsO₄、KTiOPO₄ 等晶体可用于产生波长 5 μm 以下的脉冲, 而产生 5 μm 以上的脉冲则需要使用 AgGaS₂、AgGaSe₂、LiGaS₂、ZnGeP₂ 等晶体. 材料的带隙能量决定了可以采用的泵浦波长, 如 AgGaS₂、AgGaSe₂ 在 0.8 μm 或 1 μm 泵浦时易出现双光子吸收, 而 LiGaS₂ 晶体则具有大带隙能量, 可以用 1 μm 泵浦而不被损坏. ZnGeP₂ 晶体在使用 2 μm 泵浦时具有宽调谐范围, 可以对波长在 5 μm 以上的大带宽飞秒中红外脉冲进行参量放大. 在参量放大器设计时, 也需根据非线性系数和损伤阈值来优化泵浦光时间宽度和材料尺寸.

表1 中红外波段常用非线性晶体参数
Table 1 Parameters of the frequently employed nonlinear crystals in mid-infrared range

Nonlinear crystals	Transmission range/ μm	Band gap/V	Effective nonlinear coefficient /($\text{pm}\cdot\text{V}^{-1}$)	Damage threshold@ 10 ns/($\text{GW}\cdot\text{cm}^{-2}$)
LiNbO ₃	0.42~5.2 ^[20]	/	$d_{33}=34.4, d_{31}=d_{15}=5.95, d_{22}=3.07$ ^[20]	0.2 (1.06 μm) ^[20]
KNbO ₃	0.40~5.5 ^[21]	/	$d_{31}=-15.8, d_{32}=-18.3$ ^[21]	0.24 (1.06 μm) ^[21]
KTiOAsO ₄	0.35~5.5 ^[22]	/	$d_{31}=2.76, d_{32}=4.74, d_{33}=18.5$ ^[22]	0.5 (1.06 μm) ^[23]
KTiOPO ₄	0.35~4.5 ^[22]	/	$d_{31}=2.0, d_{32}=3.6$ ^[22]	0.5 (1.06 μm) ^[23]
AgGaS ₂	0.47~13 ^[22]	2.73 ^[22]	$d_{36}=12.6$ ^[22]	0.014 (1.06 μm) ^[23]
AgGaSe ₂	0.76~18 ^[22]	1.8 ^[22]	$d_{36}=39.5$ ^[22]	0.056 (2.05 μm) ^[23]
LiGaS ₂	0.32~11.6 ^[22]	4.1 ^[22]	$d_{31}=5.8, d_{24}=5.1, d_{33}=-10.7$ ^[22]	1.0 (1.06 μm) ^[22]
ZnGeP ₂	0.74~12 ^[22]	2.1 ^[22]	$d_{36}=75\pm 8$ ^[22]	0.18 (10.6 μm) ^[23]

1.2 种子光产生

基于光参量放大的中红外飞秒激光系统使用光参量过程提供中红外光的放大,为了保证放大效率,需要保证泵浦光与种子光的精确时间同步,因此种子光一般由泵浦光分束后通过若干非线性过程产生.一般较多采用超连续谱结合DFG过程的产生方式,如图5所示.单束泵浦激光分为两束,其中一束能量在10 μJ 量级,聚焦后在固体内成丝,利用自相位调制及自陡峭等非线性过程来延展光谱,经过滤波和时间展宽之后与另一束较强的泵浦光在时间和空间上重合进行差频,然后通过偏振片或者分色镜即可得到大带宽且波长可调的中红外闲频光,该闲频光可作为后续放大器的种子源.该种子产生方式除了能够实现泵浦光与种子光的被动时间同步外,所产生中红外光的CEP被动稳定,对直接与光场相关的超快过程研究中的应用具有重要意义,如在产生孤立的阿秒脉冲时需要稳定的CEP.超连续谱产生过程可以看作一个四波混频过程,其频率和相位关系为

$$\begin{cases} \omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3 \\ \psi_4 = \pi/2 + \psi_1 + \psi_2 - \psi_3 \end{cases} \quad (5)$$

式中, ω_4 和 ψ_4 为新产生光谱成分的角频率和相位,而 ω_j 和 $\psi_j(j=1,2,3)$ 为原脉冲中任意三个光谱成分的角频率和相位.新产生的光谱成分相位与原光谱成分相位相差 $\pi/2$,经过DFG过程之后,原来的CEP被抵消掉,于是能够获得稳定的CEP^[24].

表2列举了常用的产生超连续谱的材料,和非线性晶体选择过程类似,需根据泵浦光波长以及目标光谱范围选择材料^[25].图6为近年来一些具有代表性的实验结果,显示了不同波长泵浦光($\sim 0.8 \mu\text{m}$, $\sim 1 \mu\text{m}$, $\sim 2 \mu\text{m}$)获得的超连续谱波长范围,可以为研究人员进行基于光参量放大的飞秒中红外系统设计提供参考.

表2 常用超连续谱产生材料参数^[25]
Table 2 Parameters of frequently used materials for supercontinuum generation^[25]

Materials	Band gap/eV	Transmission range/ μm	$n_2/(\times 10^{-16}\text{cm}^2\cdot\text{W}^{-1})$	n_0	$\lambda_0/\mu\text{m}$
LiF	13.6	0.12~6.6	0.81	1.39	1.23
CaF ₂	10	0.12~10	1.3	1.43	1.55
Al ₂ O ₃	9.9	0.19~5.2	3.1	1.76	1.31
SiO ₂	9.0	0.18~3.5	2.4	1.45	1.27
YAG	6.5	0.21~5.2	6.2	1.82	1.60

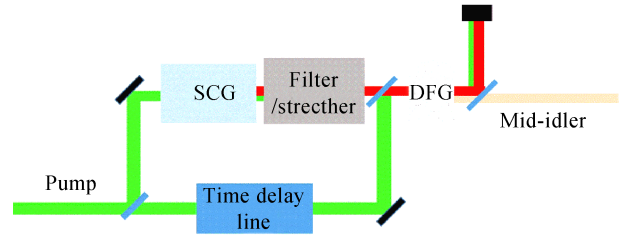
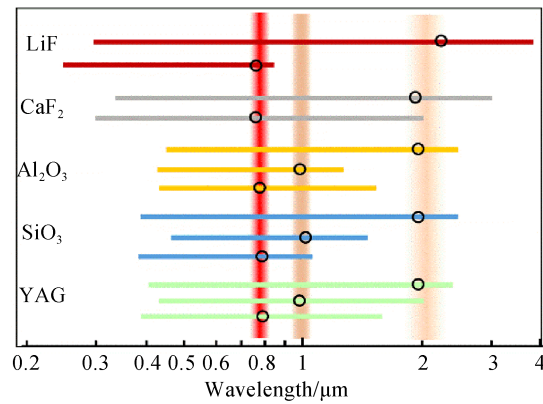
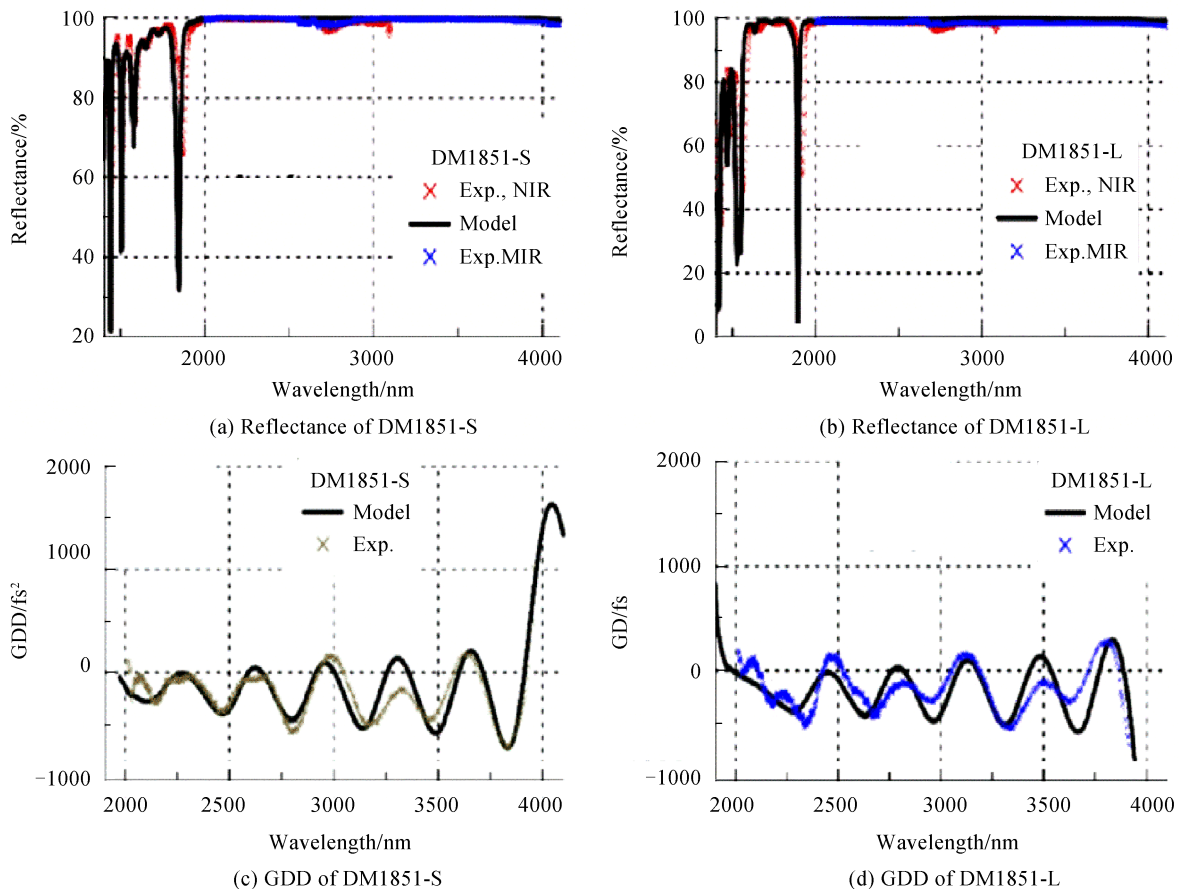


图5 种子产生系统
Fig. 5 A typical seed generation scheme

图6 不同泵浦波长在各材料中产生的超连续谱波长范围^[25]Fig.6 Spectral range of the supercontinuum generated in various material while driven by light of different wavelengths^[25]

1.3 色散控制

在超短脉冲产生和放大过程中,不可避免地需要引入光栅、棱镜以及啁啾镜等色散元件对脉冲进行展宽、压缩或高阶色散补偿,为获得变换极限脉宽,需要对系统色散进行精确管理.不同于近红外激光系统,如钛宝石拍瓦激光器,需要使用光栅将脉宽展宽到纳秒量级,中红外飞秒系统由于脉宽较小(一般为飞秒或皮秒量级),同时为了避免光栅导致的能量损失,往往使用材料色散(一般为固体)和中红外啁啾镜进行展宽和压缩.相比于近红外啁啾镜,中红外波段啁啾镜技术成熟度相对较低.2019年,德国 Ultrafast Innovations 公司研发了使用 Si/SiO₂膜的啁啾镜^[26],可用于 2~4 μm 波长范围的中红外脉冲色散控制,为了消除群延迟色散(Group Delay Dispersion, GDD)的振荡效应,需使用互补啁啾镜对.两个啁啾镜的反射率曲线如图 7(a)、

图7 2~4 μm 波段互补中红外啁啾镜对反射率和 GDD 曲线^[26]Fig.7 Reflectance and GDD of the complementary chirped mirror pair in the wavelength of 2~4 μm^[26]

(b)所示,反射率超过99.7%。互补啁啾镜对的GDD曲线如图7(c)、(d)所示,可以看到其GDD周期性的振荡方向正好相反,因而可以互相抵消,最终通过两块啁啾镜的配合使用获得 -200 fs^2 的GDD。

2017年,HABEL F等使用Ge和ZnSe膜材料制造了波段覆盖 $9\sim 11.5\ \mu\text{m}$ 的啁啾镜,其反射层由36层膜构成,该啁啾镜在 $8\sim 12\ \mu\text{m}$ 的反射透射和吸收率见图8(a),其中反射率大致在96%~97.5%之间。从图8(b)可以看到该啁啾镜GDD为 $1\ 500\ \text{fs}^2$,设计GDD曲线无法达到目标那样的平坦曲线,实际测量结果与设计GDD曲线符合较好^[27]。

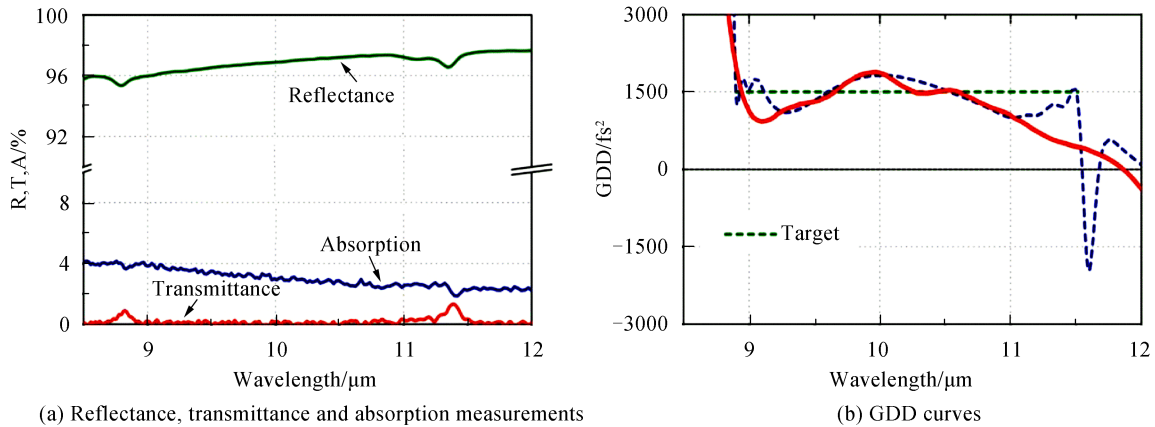


图8 长波中红外啁啾镜反射、透射和吸收曲线测量结果,与GDD曲线^[27]

Fig.8 Measured reflectance, transmittance, absorption and GDD curves of the chirped mirror^[27]. Reprinted with permission from Ref.[27] ©The Optical Society

相比中红外波段啁啾镜,材料本身的色散更容易被用于飞秒中红外脉冲的展宽和压缩中,在使用过程中需要考虑透过率范围是否覆盖目标波长区域,以及材料的GVD能否提供足够色散量,同时也应考虑高阶色散对脉宽的影响,避免在时间上产生不利于获得高对比度和高峰值功率脉冲的较大脉冲基底。Silicon、 CaF_2 、ZnSe、Ge和 BaF_2 等常用材料的透过率曲线和GVD曲线如图9所示,其GVD则通过相关材料的Sellmeier公式计算获得^[28]。可以看到Silicon、 CaF_2 等材料可以用于 $7\ \mu\text{m}$ 以下波段,而在 $7\ \mu\text{m}$ 以外波段则需使用Ge、ZnSe等晶体进行色散控制。其中Silicon和Ge在较大波长范围内具有正的GVD,可以使用ZnSe、 CaF_2 、 BaF_2 材料中的负色散对其进行补偿。

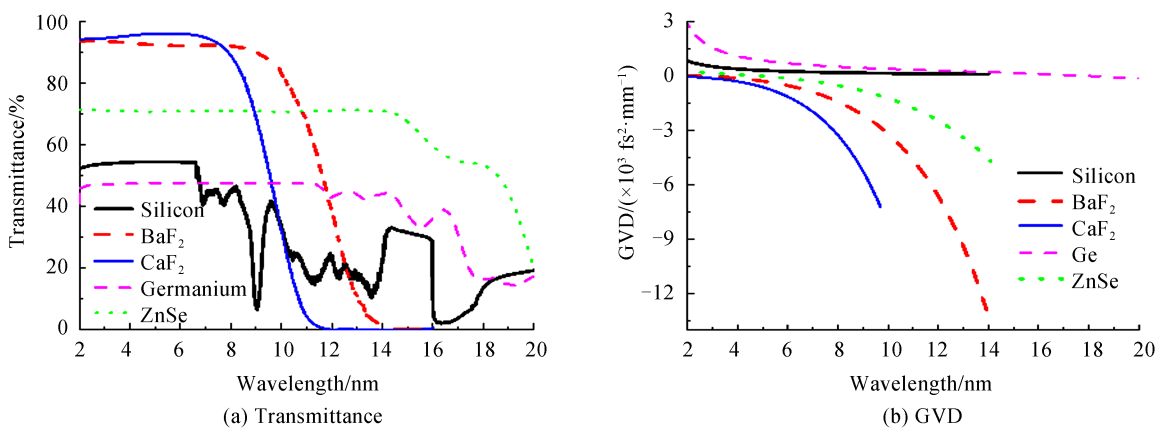


图9 常用中红外色散材料的透过率曲线和GVD

Fig. 9 Transmittances and GVD of several typical materials for dispersion management

为了能够将中红外脉冲的脉宽压缩至变换极限脉宽,需要充分补偿高阶色散,否则将无法避免时间基底的出现。高阶色散往往无法通过材料色散或者啁啾镜完全补偿,而需使用可编程声光滤波器(如Fastlite公司的Dazzler)^[29]或空间光调制器(Spatial Light Modulation, SLM)等色散控制器件。Dazzler通过控制晶体内声波的强度和时间波形控制衍射光的光谱强度和相位,而SLM则通过4f零色散压缩器中位于傅里叶平面

处的器件(如液晶、微型反射镜阵列、变形镜等)进行光谱分辨的光程调制,从而控制光谱相位.2018年,BOCK M等使用SLM对 $5\ \mu\text{m}$ 中红外光进行间接光谱相位控制(信号光波长 $3.6\ \mu\text{m}$),获得了小于5个光周期的脉宽^[30].该SLM使用了硅基液晶技术(见图10(a)),液晶材料厚度 $14\ \mu\text{m}$,采用ZnSe和Silicon作为窗口和基板.因为在 $3.6\ \mu\text{m}$ 附近具有较小的吸收系数,因此该SLM工作于信号光波段,通过补偿高阶色散并结合 CaF_2 固体材料压缩器将 $5\ \mu\text{m}$ 中红外脉冲由 $3\ \text{ps}$ 压缩至 $80\ \text{fs}$.

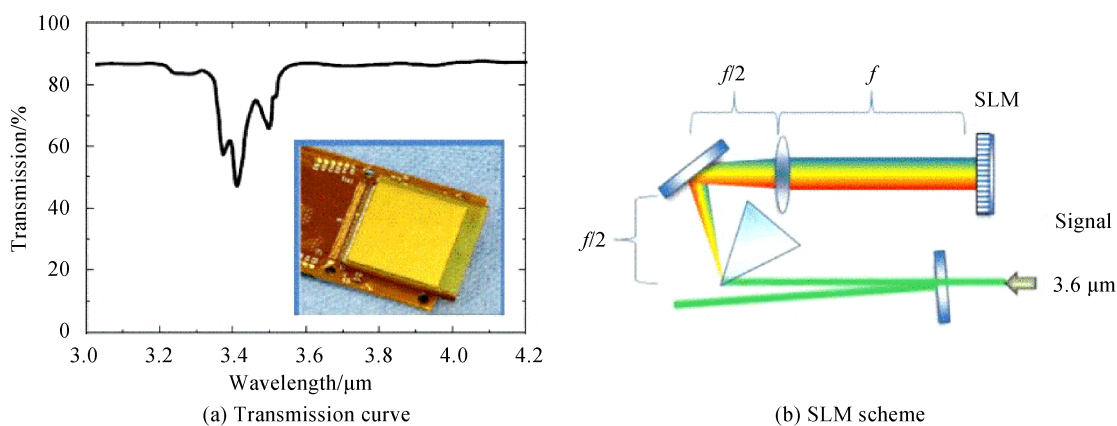


图10 SLM液晶透过率和SLM脉冲整形结构示意图^[30]

Fig. 10 Transmittance of the liquid-crystal in the SLM and the setup of the SLM based pulse shaper^[30]

2 中红外飞秒光参量放大系统发展现状

随着泵浦激光技术以及非线性材料的发展,基于光参量放大技术的中红外飞秒光源研究取得了长足的进步.图11列举了目前中红外飞秒光参量系统输出水平,可以看到基于成熟的钛宝石激光器泵浦源的中红外飞秒光源的脉冲能量已达数十毫焦,而高平均功率中红外飞秒系统则普遍采用了近期发展迅速的 $1\ \mu\text{m}$ 激光器作为泵浦,其最高平均功率达到了 $15\ \text{W}$.中红外飞秒光源的输出参数与泵浦光紧密相关,包括中红外飞秒系统的晶体选择、系统设计、输出中红外脉冲波长、脉冲能量、重复频率等因素均极大地依赖于泵浦光的波长、脉冲能量、脉宽以及平均功率等参数,因此针对 $0.8\ \mu\text{m}$ 、 $1\ \mu\text{m}$ 、 $2\ \mu\text{m}$ 三种主流泵浦源来介绍基于光参量放大的中红外飞秒光源发展现状.

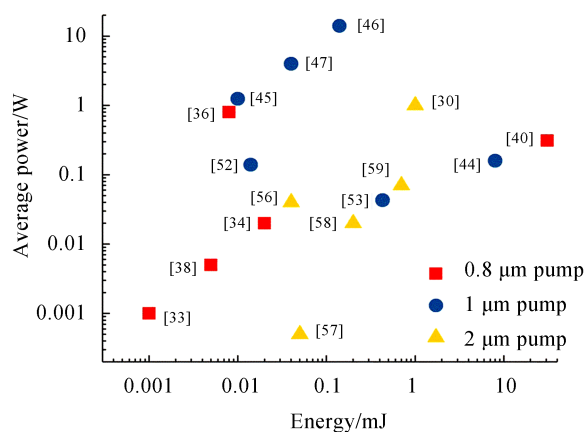


图11 近年来不同泵浦波长的基于光参量放大技术的中红外光源输出水平的典型报道

Fig. 11 Some typical reports on the performance of mid-infrared femtosecond sources based on optical parametrical amplification technique driven by pumps of different wavelength in recent years

2.1 $0.8\ \mu\text{m}$ 泵浦的中红外飞秒光源

在基于光参量的中红外飞秒光源发展初期,主要使用波长为 $0.8\ \mu\text{m}$ 的钛宝石激光器作为泵浦光.钛宝石激光技术成熟,在各种超快光学以及激光与物质作用研究中得到运用.1998年,GOLUBOVIC B等使用

100 kHz、脉冲能量为 4 μJ 的钛宝石激光泵浦 AgGaS_2 晶体,通过 DFG 产生了波长范围 2.4~12 μm 的宽带中红外脉冲,压缩后脉宽 48 fs,其峰值功率达到了 0.4 MW^[31].2002年,GRUETZMACHER J等使用重频为 4 kHz、脉冲能量为 5 μJ 、脉宽为 42 fs 的钛宝石激光泵浦 KNbO_3 晶体,通过 DFG 产生了波长在 2.7~4.7 μm 范围可调的中红外脉冲,压缩后脉宽小于 65 fs^[32].2002年,WITTE T等使用 1 kHz、1 mJ、80 fs 光源泵浦 AgGaS_2 ,通过 DFG 产生了 3~10 μm 可调的中红外脉冲,压缩后脉宽为 80 fs,中心波长为 3 μm 时脉冲能量 1 μJ ^[33].2006年,GHOTBIM 等使用 1 kHz、脉冲能量为 375 μJ 、脉宽为 80 fs 的钛宝石激光泵浦 BiBO ,产生波长 3 μm 以外、脉宽为 136 fs 的中红外脉冲,其信号光和闲频光的脉冲能量总和为 80 μJ ^[34].2007年,BRIDA D等使用 1 kHz、脉冲能量为 300 μJ 、脉宽为 50 fs 的钛宝石激光泵浦 LiIO_3 ,产生了波长覆盖 3~4 μm 中红外脉冲,脉冲能量为 2 μJ ,转换极限脉宽为 30 fs^[35].2011年,BRADLER M等使用 100 kHz、脉冲能量为 250 μJ 、脉宽为 150 fs 的钛宝石激光泵浦 LiNbO_3 ,通过 DFG 产生波长范围 1~5 μm 、脉冲能量为 8 μJ 的中红外脉冲,中心波长为 3.5 μm 时的脉宽为 38 fs^[36].2012年,ISAIENKO O等使用 1 kHz、脉冲能量为 0.6 mJ、脉宽为 150 fs 的钛宝石泵浦 LiNbO_3 和 KNbO_3 组合晶体,产生波长为 1.8~3.5 μm 、脉宽小于 30 fs 的中红外脉冲^[37].2016年,KANESHIMA K等使用 1 kHz、脉冲能量为 7 mJ、脉宽为 40 fs 的钛宝石激光器作为泵浦源,通过双色近红外光脉冲内差频过程产生了 5~11 μm 可调的中红外脉冲,脉冲能量为 5 μJ ,脉宽为 70 fs^[38].2017年,MORIMOTO T等使用脉冲为 1.2 mJ、脉宽为 25 fs 泵浦 LiGaS_2 晶体,同样通过脉冲内差频过程得到波长为 10 μm 、脉冲能量为 0.8 μJ 、脉宽为 70 fs 的中红外脉冲^[39].

可以看到,前文所述的中红外飞秒光源使用的泵浦能量都在毫焦量级,因此获得的中红外飞秒脉冲能量较低.目前钛宝石激光器单脉冲能量可以达到数十焦耳,因此有机会通过光参量放大获得大能量中红外飞秒脉冲.2018年,FU Yu-xi等通过 DC-OPA 技术,使用约 700 mJ 的脉冲能量泵浦 $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 晶体产生了重频为 10 Hz、中心波长为 3.3 μm 、脉宽为 70 fs(6.3 个光周期)的中红外脉冲,其脉冲能量为 31 mJ,峰值功率达到 0.3 TW^[40].其光路如图 12 所示,信号光与泵浦光均为宽带啁啾光,信号光脉宽为 5 ps,信号光放大之后经过 CaF_2 材料进行压缩,最终获得了近变换极限脉宽.随后,FU Yu-xi 等又首次将中红外飞秒脉冲能量提高到 120 mJ,比其他报道结果高近 10~100 倍^[41].

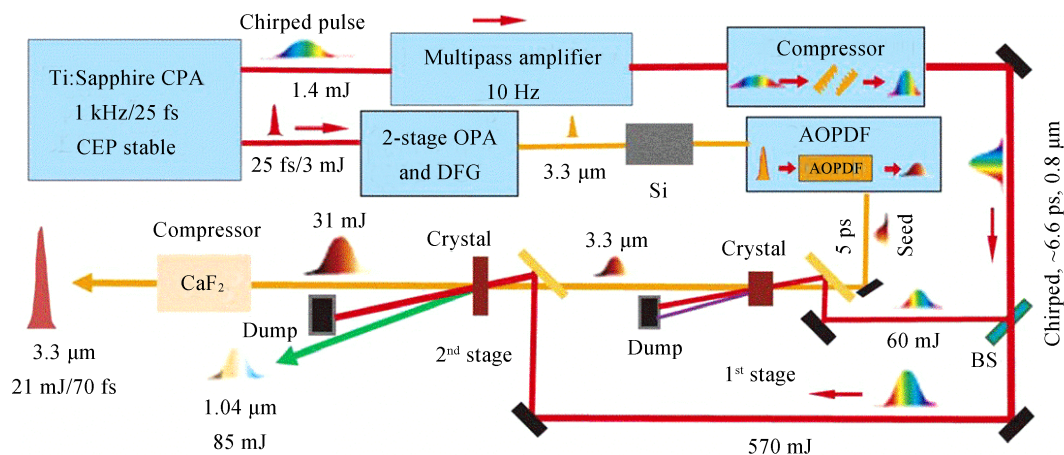


图 12 峰值功率为 0.3 TW 的 DC-OPA 系统^[40]

Fig. 12 Schematic of DC-OPA with peak power of 0.3 TW^[40]

2.2 1 μm 泵浦的中红外飞秒光源

近年来,高平均功率皮秒脉宽的 1 μm 激光器,特别是光纤激光器和基于 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 板条、薄片激光器发展迅猛,已经广泛应用于科研与工业领域. $\text{Yb}:\text{YAG}$ 激光器可以使用成熟的 940 nm 半导体激光进行泵浦,其量子亏损 9%,当使用零声子线泵浦时(泵浦波长为 969 nm),量子亏损下降到约 6%,极大地降低了热功率.板条和薄片结构激光介质具有大的冷却面积与体积比,能够高效冷却,可支持 kW 级平均功率.目前 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 薄片再生放大器可以输出 1 kW 平均功率^[42],而 $\text{Yb}:\text{YAG}$ 薄片多程放大器也能够支持 kW 级以上的平均功率^[43].高平均功率为 1 μm 的泵浦光源的使用能够极大地提高中红外飞秒光参量放大系统的平均功

率.2011年,ANDRIUKAITIS G等使用脉冲能量为250 mJ、脉宽为70 ps的Nd:YAG激光器泵浦KTiOAsO₄晶体产生中心波长为3.9 μm、脉冲能量为8 mJ、脉宽为83 fs的中红外脉冲.由于Nd:YAG中的热效应限制,重复频率只有20 Hz^[44].2016年,RIGAUD P等使用脉冲能量为400 μJ、脉宽为400 fs的掺Yb光纤激光器泵浦MgO:PPLN,通过DFG产生3.07 μm中红外脉冲,脉冲能量为10 μJ,脉宽为72 fs.由于光纤大的冷却表面与体积比,其重频为125 kHz.值得关注的是作者讨论了非线性晶体中的热效应对光束质量的影响^[45].2018年,THIRÉ N等使用通快公司Yb:YAG薄片激光器(DIRA200,重频为100 kHz,脉宽为1.1 ps)泵浦LiNbO₃晶体,获得3.2 μm的中红外脉冲,其脉宽为38 fs,该光源目前已经安装于欧洲极端光设施阿秒光源中心(ELI-ALPS)的中红外光源实验室.该系统结构如图13所示,采用超连续谱结合DFG产生 CEP 稳定种子,随后经过四级参量放大后脉冲能量大于100 μJ,平均功率达15 W.由于泵浦光卓越的能量稳定性,其能量稳定性<0.7% RMS.种子光具有 CEP 被动稳定性,在使用高速Dazzler进行稳定后单发 CEP 噪声小于65 mrad RMS(8 h)^[46].在该系统中,一个重要的设备为LiNbO₃晶体可编程声光滤波器(Fastlite生产).相对于基于TeO₂的Dazzler,LiNbO₃具有更高的声速,因此声波刷新速度可以达到100 kHz以上,并且具有更大的接受角(~6°)和更小的空间走离角^[47].

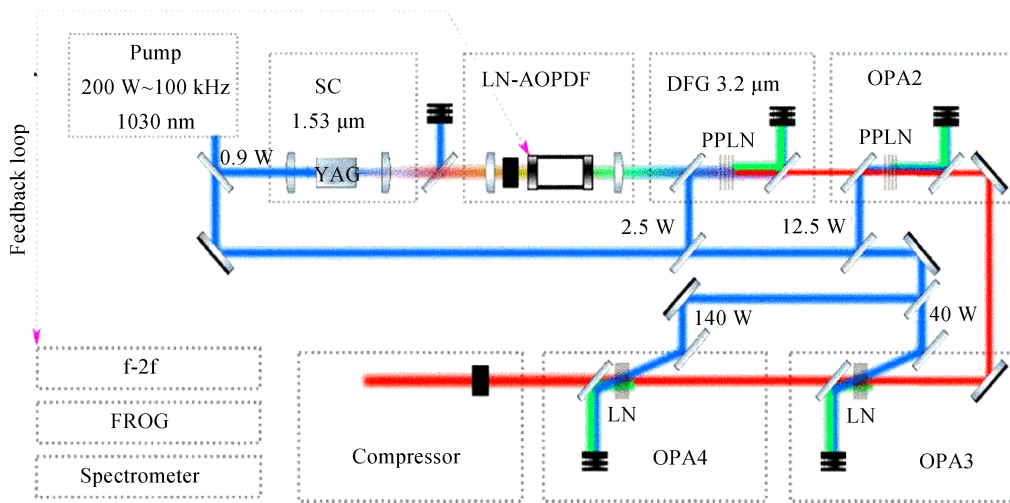


图13 15.1 W高平均功率中红外系统结构^[46]

Fig. 13 Schematic of the mid-infrared source with average power of 15.1 W^[46]

在采用AgGaS₂、AgGaSe₂、GaSe等非氧化非线性晶体时,中红外光参量放大系统可将波长扩展到5 μm以上,这类中红外飞秒脉冲对于强场物理^[48]、激光等离子体非相干硬X射线发射^[49]、中红外成丝^[50]等研究领域具有独特优势.但是由于这些晶体的带隙能量较小,当使用1 μm激光泵浦时,容易发生双光子吸收,造成材料退化和损伤,而LiGaS₂晶体具有大的带隙能量,能够使用1 μm泵浦,可将中红外脉冲波长向长波方向扩展.如2018年,SEIDEL M等使用37.5 MHz、脉冲能量为1.3 μJ、脉宽为230 fs、平均功率为50 W的1 μm激光泵浦LiGaS₂晶体获得7~10 μm波长范围的中红外脉冲^[51].2019年,QU Shi-zhen等使用Yb:YAG板条激光器(Amphos100,重频为10 kHz,脉冲能量为14 mJ,脉宽为1 ps)泵浦LiGaS₂晶体产生波长为9 μm的中红外脉冲(见图14)^[52],脉宽为142 fs(约为5个光周期),脉冲能量为14 μJ.该系统使用ZnSe材料进行脉冲展宽,并使用Ge进行脉冲压缩.同年,BRIDGER M等使用Yb:YAG板条激光器(Amphos 400 W,重频为100 Hz,脉冲能量为20 mJ,脉宽为1.2 ps)泵浦LiIO₃晶体,产生了中心波长为3 μm、脉冲能量为430 μJ、脉宽为65 fs的中红外脉冲^[53].

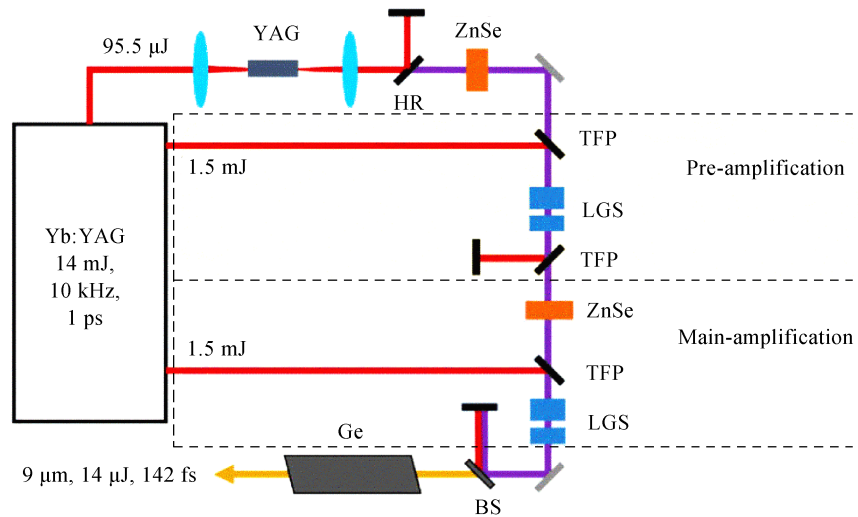
图 14 基于 LiGaS₂ 的 9 μm 飞秒中红外系统^[52]

Fig.14 9 μm femtosecond mid-infrared source based on LiGaS₂^[52]. Reprinted with permission from Ref.[52] ©The Optical Society

2.3 ~2 μm 泵浦的中红外飞秒光源

如前所述,波长大于 5 μm 的中红外飞秒脉冲在多个研究领域具有优势,而 ZnGeP₂ 和 CdSiP₂ 等晶体在产生这类脉冲方面表现出优良的特性,如 ZnGeP₂ 晶体具有高非线性系数、高损伤阈值、高热导率,在长波长中红外波段的光参量放大中具有极高的潜力,但由于透过窗口的限制(如 ZnGeP₂: 1.9~10 μm),泵浦光波长必须大于 1.9 μm,因此掺 Yb、Nd 以及钛宝石激光系统并不适用.掺 Ho 激光系统(Ho:YLF, Ho:YAG 等)可以输出 ~2 μm 波长的高能量皮秒脉冲,在频率转换时具有更大的量子效率,并且可以缓解晶体的缺陷相关损伤^[54].近年来, Ho:YLF、Ho:YAG 等 2 μm 激光技术进展较大^[55].2016 年, WANDEL S 等进行了 2 μm 泵浦 ZnGeP₂ 的理论和实验研究,实验中使用 10 Hz 泵浦光获得了脉冲能量大于 50 μJ 的中红外脉冲,其波长为 5 μm,脉宽为 700 fs^[56].2016 年, SANCHEZ D 等使用重频为 100 Hz、脉冲能量为 34 mJ、脉宽为 11 ps 的 Ho:YLF 激光器泵浦 ZnGeP₂ 产生 7 μm 中红外脉冲,脉冲能量为 200 μJ,脉宽为 180 fs^[57].2017 年, KANAI T 等使用重频为 1 kHz、波长为 2.4 μm、脉冲能量为 3 mJ、脉宽为 1 ps 的 Ho:YAG 激光器泵浦 ZnGeP₂ 晶体,产生了波长为 5.2 μm 的中红外脉冲,脉冲能量为 40 μJ,脉宽为 100 fs^[58].2018 年, BOCK M 等使用重频为 1 kHz、波长为 2.5 μm、脉冲能量为 20 mJ、脉宽为 7 ps 的 Ho:YLF 激光器泵浦 ZnGeP₂, 产生了 5 μm 中红外脉冲,脉冲能量为 1 mJ,脉宽为 80 fs^[30].2019 年, ELU U 等发展了高能量 Ho:YLF 啁啾激光器,其重频为 100 Hz,脉冲能量达到了 260 mJ,而脉宽为 16 ps^[59].泵浦多级 ZnGeP₂ 参量放大器后产生 7 μm 中红外脉冲,获得了脉宽为 188 fs 的中红外脉冲,约为 8 个光周期(见图 15).由于受 ZnGeP₂ 晶体尺寸限制,实际使用泵浦光能量为 21.7 mJ,因此获

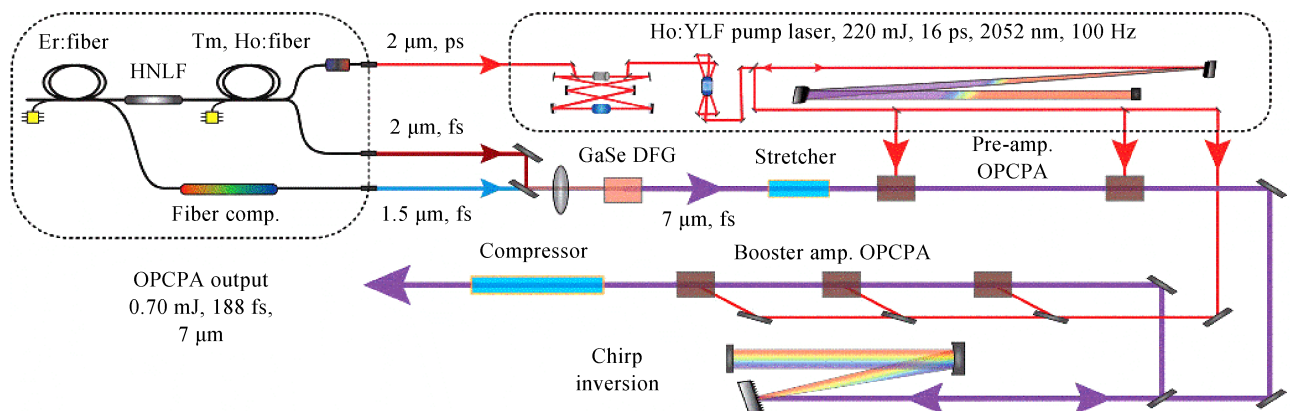
图 15 毫焦级 7 μm 飞秒中红外系统^[59]

Fig. 15 7 μm femtosecond mid-infrared source with pulse energy of millijoule level^[59]. Reprinted with permission from Ref.[59] ©The Optical Society

得的中红外脉冲能量为 0.7 mJ.

CEP 稳定的单周期甚至亚周期中红外飞秒脉冲可以在固体中控制电子运动,并能够在纳米器件中实现亚周期电子隧穿,也可以产生高光子能量的孤立阿秒脉冲,该类中红外飞秒超短脉冲激光光源引起了研究人员关注^[60].2017年,YIN Yan-chun 等提出了产生 4~12 μm 太瓦级亚周期光源方案,如图 16(a)所示.钛宝石激光器通过 DFG 和 DC-OPA 分别产生 2.4~4 μm 的信号光和 2 μm 泵浦光种子,泵浦光由 Ho:YLF 放大器提供增益而获得放大,然后通过 DFG 产生 4~12 μm 闲频光并在 ZnGeP₂ 晶体中得到进一步放大,其放大后的光谱如图 16(b)所示.放大后的脉冲使用 NaCl 进行压缩,而高阶色散则通过 Dazzler 对信号光的调制进行间接补偿,该方案可以支持 22.1 fs 的脉宽(见图 16(c)).

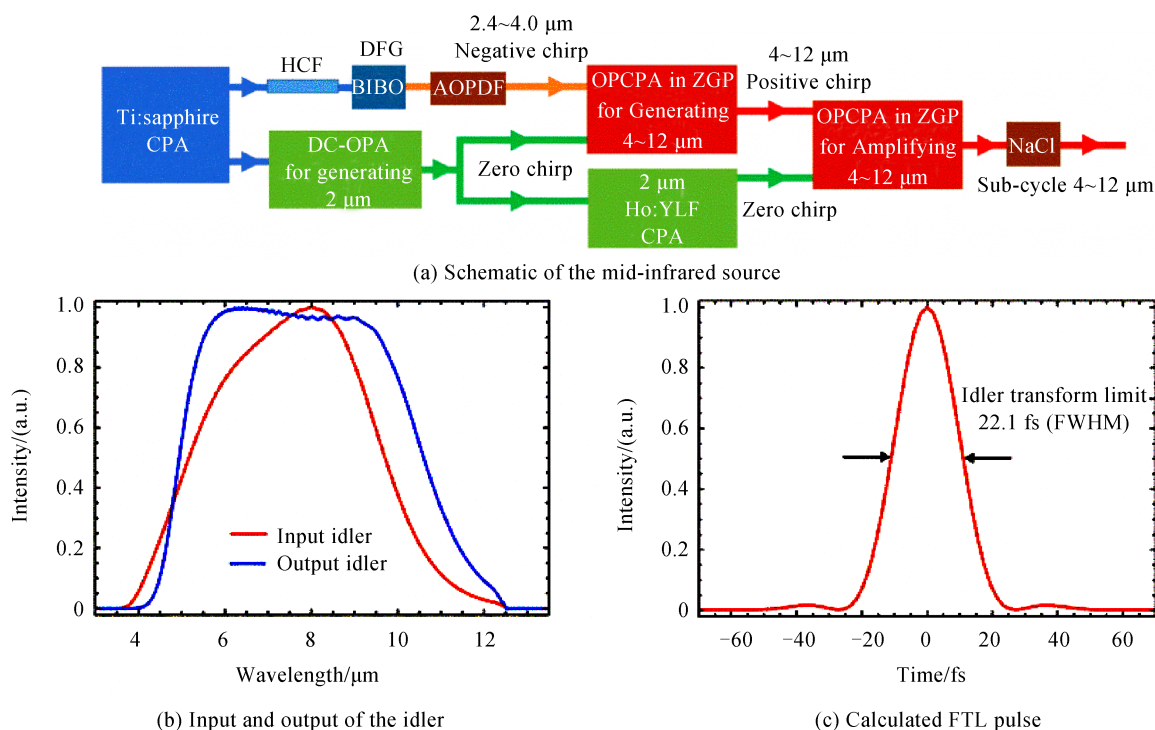


图 16 4~12 μm 中红外光源原理验证系统结构^[60]

Fig. 16 Proof-of-principle schematic setup of the 4~12 μm mid-Infrared source^[60]

3 中红外飞秒光参量放大系统发展趋势及关键问题

泵浦激光技术的发展和新的非线性晶体的使用推动着基于光参量放大的中红外飞秒光源参数的进步,其输出光谱已经可以覆盖 10 μm 以上波段,而输出脉宽能够缩短至小于 1 个光周期,极大地提高了中红外飞秒光源的性能.同时也注意到目前能够获得平均功率仍然较低,且输出光束主要为高斯型,限制了中红外飞秒光源的应用潜力.如,在通过高次谐波方法产生阿秒脉冲的过程中,驱动光向阿秒脉冲的能量转换效率较低,为了提高阿秒脉冲的功率,缩短实验时间并提高实验结果的信噪比,驱动光源必须向高重频发展.另外,具有特殊偏振状态和波前形状的飞秒结构光(径向/角向偏振光和涡旋光等)在信息、成像和光与物质相互作用等多个领域有着重要应用,如使用中红外飞秒涡旋光可以通过高次谐波过程产生携带轨道角动量且光子能量大于 100 eV 的阿秒脉冲,因此如何产生中红外波段的飞秒涡旋光引起了科研人员的关注.

3.1 向高功率发展

基于光参量放大的中红外飞秒光源平均功率的提升取决于两个方面,即高功率泵浦激光的研发和非线性晶体材料热效应控制.不同波段的高功率泵浦源技术是基于光参量放大技术获得高功率中红外飞秒光源的前提条件.高功率泵浦源的发展受益于两个技术的成熟,即半导体泵浦技术和板条/薄片固体放大器技术.半导体叠阵冷却技术和光束整形技术的采用为固体激光放大器提供了高亮度高功率的泵源,而板条或者薄片的放大器介质形状极大地提高了冷却效率.目前,1 μm 的 Yb:YAG 激光器可以输出数千瓦的平均功

率,脉冲能量可以达到焦耳量级。 $2\ \mu\text{m}$ 的Ho:YAG薄片激光器研究也有较大进展,2018年ZHANG Jing-wei等进行了高效率的Ho:YAG薄片振荡器研究(见图17),获得了大于20 W的平均功率^[61]。Ho:YAG放大器一般使用掺铥光纤激光器泵浦,随着掺铥光纤激光器平均功率的提升或多光纤泵浦技术的使用,可以预见基于Ho:YAG薄片的 $2\ \mu\text{m}$ 皮秒激光将达到千瓦级平均功率。

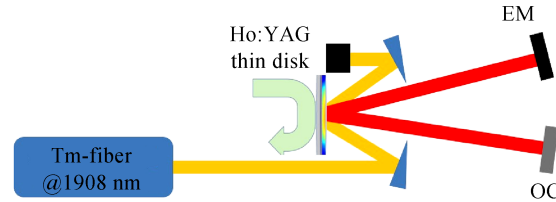
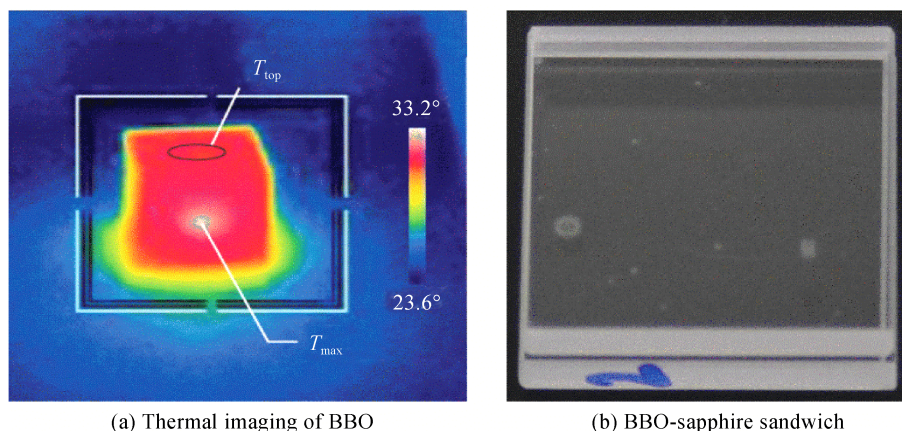


图17 Ho:YAG薄片激光器

Fig. 17 Layout of the Ho:YAG thin-disk laser

在光参量放大器中,虽然频率转换过程中多余光子能量转变为闲频光传播到晶体外部,但是晶体对透过的光束存在吸收,特别是对中红外波段的闲频光吸收较大。即使吸收系数很小,在非常大的平均功率条件下,热效应仍将无法忽视,其不仅会改变相位匹配条件,导致频率转换效率降低,而且高的温度和梯度也会造成晶体材料的损伤。由于目前中红外飞秒系统平均功率较低,热效应主要被近红外光源的研究者们所关注^[62]。2014年,RIEDEL R等对BBO、LBO和BiBO的热效应进行了理论和实验研究^[63]。图18(a)显示了120 W泵浦功率下BBO晶体的温度分布测量结果,可以看到BBO晶体存在明显的温度梯度。为保证相位匹配条件,经过理论计算需保证非线性晶体最大温度差对BBO、LBO和BiBO分别为125 K、36 K和17 K,可以看到BBO对温度变化最为敏感。为了缓解热效应危害,需对非线性晶体温度进行主动控制,如果仅使用空气对流进行冷却则会产生气体湍流,对于光束指向稳定不利。研究者提出了使用三明治结构对非线性晶体进行冷却,如图18(b)所示^[64]。使用两片白宝石片结合在BBO晶体两个表面,晶体侧边与热沉相连,利用白宝石片的热导率大的优点来进行BBO的端面冷却,可以极大地降低峰值温度和温度梯度,理论预测可以支持千瓦级的功率输出。需要指出的是非线性晶体的热效应分析较为复杂,首先其损伤阈值除了与晶体特性相关之外,还与晶体表面缺陷相关,其次不同厂家生产的非线性晶体吸收系数往往不同,主要决定于晶体生长方法、材料纯度以及该晶体在原晶锭中的位置等因素。目前研究人员对适用于中红外波段的非线性晶体的热效应研究还比较缺乏,随着对中红外飞秒光源平均功率的要求逐渐提高,非线性晶体热效应(材料损伤和相位匹配)的理论和实验研究将日益紧迫。

图18 平均功率为120 W的515 nm泵浦的BBO晶体热成像和BBO晶体与白宝石晶体结合后形成的三明治结构^[63-64]Fig. 18 Thermal imaging of BBO crystal pumped with optical power of 120 W at 515 nm and the photograph of the BBO-sapphire sandwich structure^[63-64]

3.2 向结构光发展

结构光可以由特殊设计的相位板或者SLM产生,但是这些器件的适用波长范围有限,并且损伤阈值较

低,无法用于产生较大能量的飞秒结构光,因此人们开始选择使用光参量放大器对中红外飞秒结构光进行放大.由于具有特殊偏振分布的结构光无法直接满足相位匹配,因此目前主要研究工作集中在中红外飞秒涡旋光的光参量放大.如2017年,CAMPER A等通过使用800 nm泵浦 KTiOAsO_4 晶体产生了波长为3~3.6 μm 可调的飞秒中红外涡旋光,系统结构如图19所示.使用螺旋相位板对泵浦光整形,信号光由白宝石片中的超连续谱过程产生,信号光为高斯光束,然后通过DFG将泵浦光的螺旋波前传递到闲频光,从而能够产生中红外波段的光涡旋^[65].

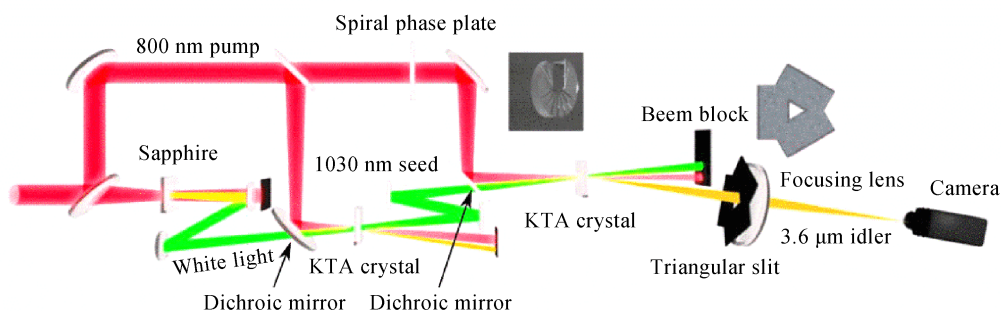


图19 波长可调的中红外涡旋光产生OPA系统^[65]

Fig. 19 Schematic of the wavelength tunable optical vortex OPA system^[65]. Reprinted with permission from Ref. [65] ©The Optical Society

2020年,QIAN Jun-yu等使用 KTiOAsO_4 晶体对4 μm 涡旋光进行了光参量放大(见图20).该OPCPA的信号光和泵浦光种子由同一个钛宝石激光器产生,确保时间同步.泵浦光种子由Nd:YAG放大器进行放大(20 Hz),而涡旋信号光的螺旋相位由螺旋相位板(基材为硅)引入,拓扑荷为1,其脉冲能量为36 μJ .经过两级共线参量放大器之后,信号光能量增加至12.4 mJ,经过光栅对压缩器之后,脉宽为119 fs,脉冲能量为9.53 mJ^[66].

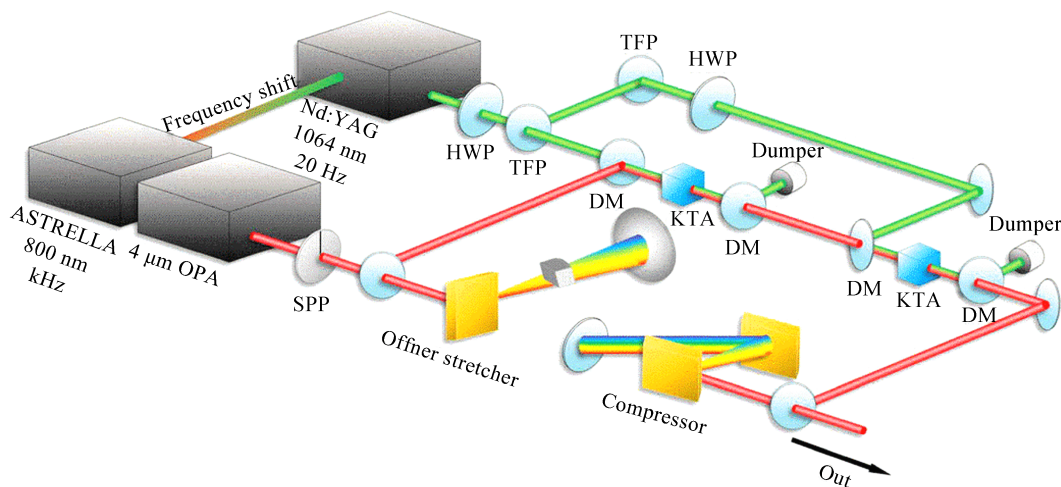
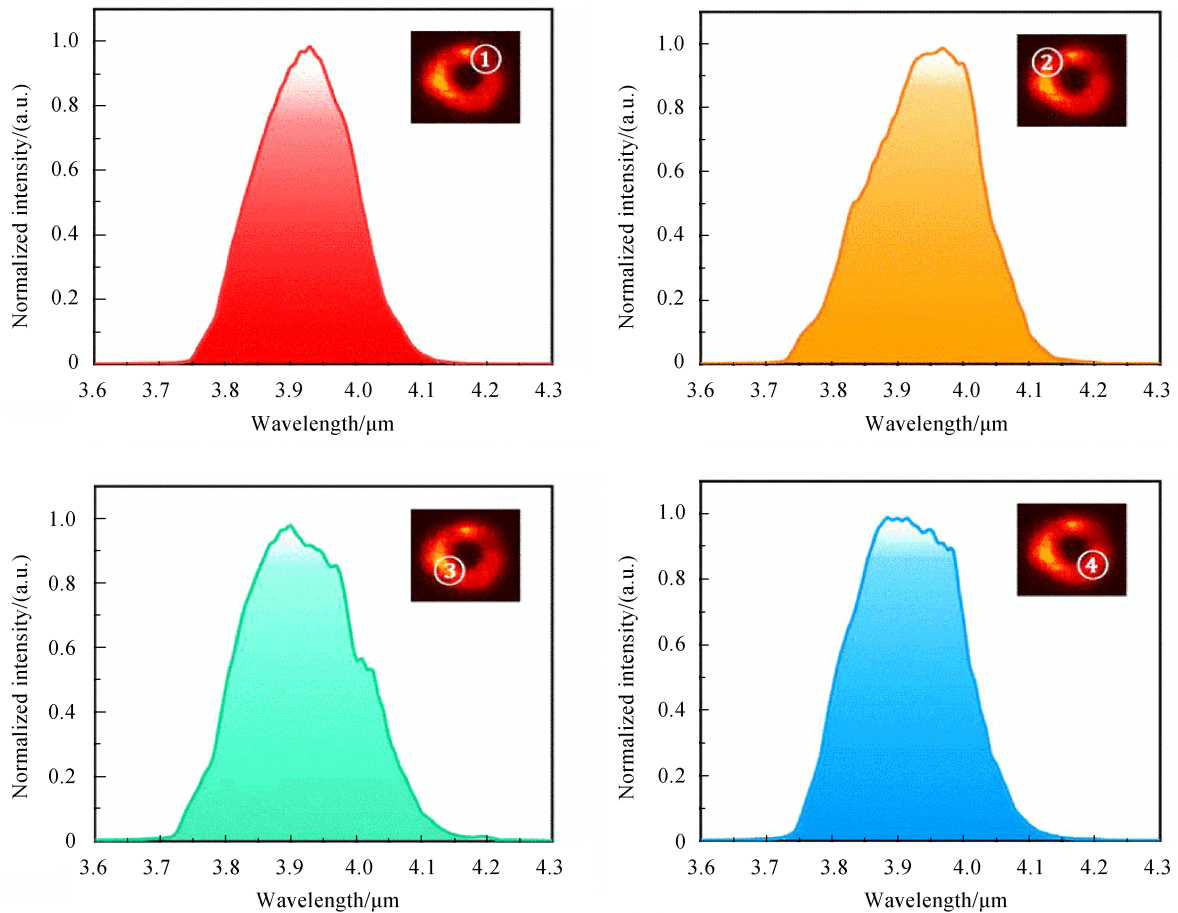


图20 4 μm 涡旋光OPCPA系统^[66]

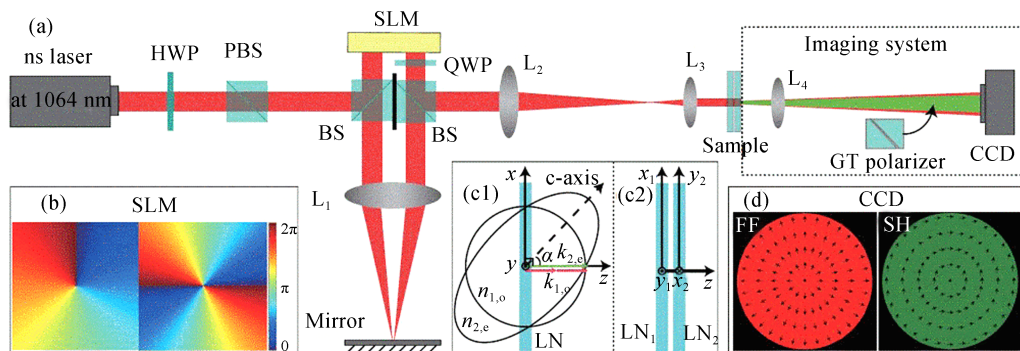
Fig. 20 Schematic of the 4 μm optical vortex OPCPA system^[66]

图21为该中红外涡旋光在4个不同象限位置所测量的光谱(使用了Fastlite的MOZZA),各光谱形状差别较小,谱宽约为200 nm,其空间色散可以忽略.该技术可以用于产生波长更长的中红外光涡旋,在缺乏该波段螺旋相位板的情况下可以采用间接方法获得螺旋波前,如对泵浦或闲频光进行整形^[65].相对来说对闲频光进行整形更有优势,因为一方面泵浦光束穿过相位板后存在能量损失,将造成总效率下降,另一方面泵浦光复杂的空间光强调制容易引起放大后信号光的光束质量降低.

具有空间变化的偏振态光束的参量放大无法在一块晶体中实现,针对这一问题人们已经提出了使用两块晶轴互相垂直的晶体对进行频率转换,让每个位置水平与竖直的两个偏振分量分别放大.如2018年LIU

图 21 四个象限位置光谱测量结果^[66]Fig. 21 Spectra of the optical vortex beam measured at four different quadrants^[66]

Hai-gang 等使用两块 LiNbO_3 晶体 (见图 22(c2)) 对 1 064 nm 的径向偏振激光进行了倍频, 获得了角向偏振的 532 nm 激光^[67]. 该系统中基频光借助 SLM 调制后生成径向偏振光, 采用 I 型相位方式进行倍频, 如图 22(c) 所示. 该方案可以用于径向/角向偏振的中红外脉冲的光参量放大, 但是其结构相对于单晶体放大器更为复杂, 且当泵浦光强不是平顶形状或饱和放大时, 容易造成水平和垂直方向的两个偏振分量光强比例发生变化, 造成模式退化, 因此采用该方案搭建径向/角向偏振脉冲光参量放大器的可行性还需要深入论证.

图 22 使用双晶体进行径向偏振光倍频实验系统设计^[67]Fig. 22 Schematic of the experimental setup for second harmonic generation of radially polarized beam with two nonlinear crystals^[67]. Reprinted with permission from Ref. [67] ©The Optical Society

4 结论

本文首先介绍了搭建基于光参量放大的中红外飞秒系统的关键技术,包括种子产生、光参量放大和色散控制.然后针对不同泵浦光波长调研了中红外飞秒光参量放大光源的研究进展.可以看到,基于光参量放大技术的中红外飞秒光源脉冲能量与平均功率水平与泵浦光参数紧密相关:如大能量中红外飞秒脉冲主要基于技术成熟的大能量钛宝石激光泵浦源,获得了脉冲能量为31 mJ的中红外飞秒光源(中心波长为3.3 μm);高平均功率中红外飞秒光源一般使用具有优异热特性的激光器作为泵浦,如Fastlite公司使用Yb:YAG薄片激光器作为泵浦源获得了平均功率为15 W的飞秒中红外脉冲光源,而平均功率进一步提升则需要考虑非线性晶体的热效应.与此同时,焦耳级Yb:YAG薄片多程放大器的研究进展迅速,可以预期大能量且高平均功率的中红外飞秒光参量放大系统将会取得重大进展.近年来,Ho:YLF以及Ho:YAG等 $\sim 2 \mu\text{m}$ 高平均功率皮秒激光器技术取得进展,将有助于推动基于ZnGeP₂等晶体的波长大于5 μm 的中红外飞秒光源的性能提升.除了高斯光束以外,具有特殊偏振或者波前相位的结构光因其独特优势也引起了人们的兴趣并且已经在基于光参量放大的中红外飞秒涡旋光研究领域取得进展,该类非高斯中红外飞秒光源的发展将为信息、粒子操控和强场物理等相关领域研究提供新的契机.

参考文献

- [1] OGUZHAN K, LUKE M, TOM G, *et al.* Dual-comb spectroscopy in the spectral fingerprint region using OPGaP optical parametric oscillators[J]. *Optics Express*, 2017, **25**(26):32713-32721.
- [2] HENRY T, ABIJITH K, ALEX L, *et al.* Molecular fingerprinting with bright, broadband infrared frequency combs[J]. *Optica*, 2018, **5**(6):727-732.
- [3] WOLTER B, PULLEN M, LE A, *et al.* Ultrafast electron diffraction imaging of bond breaking in di-ionized acetylene[J]. *Science*, 2016, **354**(6310):308.
- [4] HOHENLEUTNER M, LANGER F, SCHUBERT O, *et al.* Real-time observation of interfering crystal electrons in high-harmonic generation [J]. *Nature*, 2015, **523**:572-575.
- [5] WANG Chu-ji, SAHAY P. Breath analysis using laser spectroscopic techniques: breath biomarkers, spectral fingerprints, and detection limits[J]. *Sensors*, 2019, **9**(10):8230.
- [6] JOVANOVIĆ I, XU G, WANDEL S. Mid-infrared laser system development for dielectric laser accelerators[J]. *Physics Procedia*, 2014, **52**:68.
- [7] WHALEN P, PANAGIOTOPOULOS P, KOLESIK M, *et al.* Extreme carrier shocking of intense long-wavelength pulses[J]. *Physical Review A*, 2014, **89**(2):023850.
- [8] ASILYEV S, MOSKALEV I, MIROV M, *et al.* Ultrafast middle-IR lasers and amplifiers based on polycrystalline Cr:ZnS and Cr:ZnSe[J]. *Optical Materials Express*, 2017, **7**(7):2636-2650.
- [9] VASILYEV S, PEPPERS J, MOSKALEV I, *et al.* 1.5-mJ Cr:ZnSe chirped pulse amplifier seeded by a Kerr-lens mode-locked Cr:ZnS oscillator[J]. *OSA Technical Digest*, 2019:ATu4A.4.
- [10] OKAZAKI D, ARAI H, ANISIMOV A, *et al.* Self-starting mode-locked Cr:ZnS laser using single-walled carbon nanotubes with resonant absorption at 2.4 μm [J]. *Optics Letters*, 2019, **44**(7):1750-1753.
- [11] KOZLOVSKY V, FROLOV M, KOROSTELIN Y, *et al.* Nanosecond-pulsed RT-operating at $\sim 4 \mu\text{m}$ Fe:ZnSe laser pumped inside the cavity of a LD side-pumped Er:YLF laser[J]. *Optics Express*, 2018, **26**(19):24497-24505.
- [12] CAPASSO F. Quantum cascade lasers for the mid-ir to far-ir and applications[J]. *OSA Technical Digest*, 2001:CWD1.
- [13] YAO Yu, HOFFMAN A, GMACHL C. Mid-infrared quantum cascade lasers[J]. *Nature Photonics*, 2012, **6**(7):432-439.
- [14] DUBIETIS A, JONIAUSKAS G, PISKARSKAS A. Powerful femtosecond pulse generation by chirped and stretched pulse parametric amplification in BBO crystal[J]. *Optics Communications*, 1992, **88**(4-6):433.
- [15] FU Yu-xi, TAKAHASHI E, ZHANG Qing-bin, *et al.* Optimization and characterization of dual-chirped optical parametric amplification[J]. *Journal of Optics*, 2015, **17**(12):124001.
- [16] SCHMIDT B, THIRÉ N, BOIVIN M, *et al.* Frequency domain optical parametric amplification [J]. *Nature Communications*, 2014, **5**:3643.
- [17] BOYD R. Nonlinear Optics [M]. Academic Press, 2018.
- [18] LOZHKAREV V, FREIDMAN G, GINZBURG V, *et al.* Study of broadband optical parametric chirped pulse amplification in a DKDP crystal pumped by the second harmonic of a Nd:YLF laser[J]. *Laser Physics*, 2005, **15**(9):319-333.
- [19] LIN Y, NABEKAWA Y, MIDORIKAWA K. Optical parametric amplification of sub-cycle shortwave infrared pulses [J]. *Nature Communications*, 2020, **11**:3413.

- [20] [EB/OL]. [2020-09-01]. www.redoptronics.com.
- [21] [EB/OL]. [2020-09-01]. www.laser-crylink.com.
- [22] [EB/OL]. [2020-09-01]. www.ascut-bridge.de.
- [23] [EB/OL]. [2020-09-01]. www.eksmaoptics.com.
- [24] BALTUŠKA A, FUJI T, KOBAYASHI T. Controlling the carrier-envelope phase of ultrashort light pulses with optical parametric amplifiers[J]. *Physical Review Letters*, 2020, **88**(13): 133901.
- [25] DUBIETIS A, TAMOŠAUSKAS G, ŠUMINAS R, *et al.* Ultrafast supercontinuum generation in bulk condensed media [J]. *Lithuanian Journal of Physics*, 2017, **57**(3):113-157.
- [26] PERVAK V, AMOTCHKINA T, HAHNER D, *et al.* Complementary Si/SiO₂ dispersive mirrors for 2-4 μm spectral range[J]. *Optics Express*, 2019, **27**(24):34901-34906.
- [27] HABEL F, PERVAK V. Dispersive mirror for the mid-infrared spectral range of 9 - 11.5 μm[J]. *Applied Optics*, 2017, **56**(4):C71-C74.
- [28] [EB/OL]. [2020-09-01]. <https://refractiveindex.info/>.
- [29] TOURNOIS P. Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems[J]. *Optics Communications*, 1997, **140**(4-6):245-249.
- [30] BOCK M, GRAFENSTEIN L, GRIEBNER U, *et al.* Generation of millijoule few-cycle pulses at 5 μm by indirect spectral shaping of the idler in an optical parametric chirped pulse amplifier[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2018, **35**(12):C18-C24.
- [31] GOLUBOVIC B, REED M. All-solid-state generation of 100-kHz tunable mid-infrared 50-fs pulses in type I and type II AgGaS₂[J]. *Optics Letters*, 1998, **23**: 1760-1762.
- [32] GRUETZMACHER J, SCHERER N. Few-cycle mid-infrared pulse generation, characterization, and coherent propagation in optically dense media[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2002, **73**(6):2227-2236.
- [33] WITTE T, ZEIDLER D, PROCH D, *et al.* Programmable amplitude- and phase-modulated femtosecond laser pulses in the mid-infrared[J]. *Optics Letters*, 2002, **27**(2):131-133.
- [34] GHOTBI M, EBRAHIM-ZADEH M, PETROV V, *et al.* Efficient 1 kHz femtosecond optical parametric amplification in BiB₃O₆ pumped at 800 nm[J]. *Optics Express*, 2006, **14**(22):10621-10626.
- [35] BRIDA D, MANZONI C, CIRMI G, *et al.* Generation of broadband mid-infrared pulses from an optical parametric amplifier[J]. *Optics Express*, 2007, **15**(23):15035-15040.
- [36] BRADLER M, HOMANN C, RIEDLE E. Mid-IR femtosecond pulse generation on the microjoule level up to 5 μm at high repetition rates[J]. *Optics Letters*, 2011, **36**(21):4212-4214.
- [37] ISAIENKO O, BORGUET E. Ultra-broadband sum-frequency vibrational spectrometer of aqueous interfaces based on a non-collinear optical parametric amplifier[J]. *Optics Express*, 2012, **20**(1):547-561.
- [38] 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.
- [39] MORIMOTO T, SONO N, MIYAMOTO T, *et al.* Generation of a carrier-envelope-phase-stable femtosecond pulse at 10 μm by direct down-conversion from a Ti:sapphire laser pulse[J]. *Applied Physics Express*, 2017, **10**(12):122701.
- [40] FU Yu-xi, XUE Bing, MIDORIKAWA K, *et al.* TW-scale mid-infrared pulses near 3.3 μm directly generated by dual-chirped optical parametric amplification[J]. *Applied Physics Letters*, 2018, **112**(24):241105.
- [41] FU Yu-xi, MIDORIKAWA K, TAKAHASHI E. Towards a petawatt-class fewcycle infrared laser system via dual-chirped optical parametric amplification[J]. *Scientific Reports*, 2018, **8**(1):7692.
- [42] NUBBEMEYER T, KAUMANN M, UEFFING M, *et al.* 1 kW, 200 mJ picosecond thin-disk laser system [J]. *Optics Letters*, 2017, **42**(7):1381-1384.
- [43] DIETZ T, JENNE M, BAUER D, *et al.* Ultrafast thin-disk multi-pass amplifier system providing 1.9 kW of average output power and pulse energies in the 10 mJ range at 1 ps of pulse duration for glass-cleaving applications[J]. *Optics Express*, 2020, **28**(8):11415-11423.
- [44] ANDRIUKAITIS G, BALČIŪNAS T, ALIŠAUSKAS S, *et al.* 90 GW peak power few-cycle mid-infrared pulses from an optical parametric amplifier[J]. *Optics Letters*, 2011, **36**(15):2755-2757.
- [45] RIGAUD P, WALLE A, HANNA M, *et al.* Supercontinuum-seeded few-cycle mid-infrared OPCPA system[J]. *Optics Express*, 2016, **24**(23):26494-26502.
- [46] THIRÉ N, MAKSIMENKA R, KISS B, *et al.* Highly stable, 15 W, few-cycle, 65 mrad CEP-noise mid-IR OPCPA for statistical physics[J]. *Optics Express*, 2018, **26**(21):26907-26915.
- [47] THIRÉ N, MAKSIMENKA R, KISS B, *et al.* 4-W, 100-kHz, few-cycle mid-infrared source with sub-100-mrad carrier-envelope phase noise[J]. *Optics Express*, 2017, **25**(2):1505-1514.
- [48] POPMINTCHEV T, CHEN M, OPMINTCHEV D, *et al.* Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers[J]. *Science*, 2012, **336**(6086):1287.

- [49] WEISSHAUPT J, JUVÉ V, HOLTZ M, *et al.* High-brightness table-top hard X-ray source driven by sub-100-femtosecond mid-infrared pulses[J]. *Nature Photonics*, 2014, **8**:927.
- [50] MITROFANOV A, VORONIN A, SIDOROV-BIRYUKOV D, *et al.* Mid-infrared laser filaments in the atmosphere [J]. *Scientific Reports*, 2015, **5**:8368.
- [51] SEIDEL M, XIAO X, HUSSAIN S, *et al.* Multi-watt, multi-octave, mid-infrared femtosecond source [J]. *Science Advance*, 2018, **4**(4):1526.
- [52] QU Shi-zhen, LIANG Hou-kun, LIU Kun, *et al.* 9 μm few-cycle optical parametric chirped-pulse amplifier based on LiGaS₂[J]. *Optics Letters*, 2019, **44**(10):2422-2425.
- [53] BRIDGER M, NARANJO-MONTOYA O, TARASEVITCH A, *et al.* Towards high power broad-band OPCPA at 3000 nm[J]. *Optics Express*, 2019, **27**(22):31330-31337.
- [54] AWILSKIK. T, SCHUNEMANN P, SETZLER, *et al.* Large aperture single crystal ZnGeP₂ for high-energy applications[J]. *Journal of Crystal Growth*, 2008, **310**(7-9):1891.
- [55] HEMMER M, SÁNCHEZ D, JELÍNEK M, *et al.* 2- μm wavelength, high-energy Ho:YLF chirped-pulse amplifier for mid-infrared OPCPA[J]. *Optics Letters*, 2015, **40**(4):451-454.
- [56] WANDEL S, LIN M, YIN Y, *et al.* Parametric generation and characterization of femtosecond mid-infrared pulses in ZnGeP₂[J]. *Optics Express*, 2016, **24**(5):5287-5299.
- [57] SANCHEZ D, HEMMER M, BAUDISCH M, *et al.* 7 μm , ultrafast, sub-millijoule-level mid-infrared optical parametric chirped pulse amplifier pumped at 2 μm [J]. *Optica*, 2016, **3**(2):147-150.
- [58] KANAI T, MALEVICH P, KANGAPARAMBIL S, *et al.* Parametric amplification of 100 fs mid-infrared pulses in ZnGeP₂ driven by a Ho:YAG chirped-pulse amplifier[J]. *Optics Letters*, 2017, **42**(4):683-686.
- [59] ELU U, STEINLE T, SÁNCHEZ D, *et al.* Table-top high-energy 7 μm OPCPA and 260 mJ Ho:YLF pump laser[J]. *Optics Letters*, 2019, **44**(13):3194-3197.
- [60] YIN Yan-chun, CHEW A, REN Xiao-ming, *et al.* Towards terawatt sub-cycle long-wave infrared pulses via chirped optical parametric amplification and indirect pulse shaping[J]. *Scientific Reports*, 2017, **7**:45794.
- [61] ZHANG Jing-wei, SCHULZE F, MAK K, *et al.* High-power, high-efficiency Tm:YAG and Ho:YAG thin-disk lasers [J]. *Laser and Photonics Reviews*, 2018, **12**(3):1700273.
- [62] MECSEKI K, WINDELER M, MIAHNAHRI A, *et al.* High average power 88 W OPCPA system for high-repetition-rate experiments at the LCLS x-ray free-electron laser[J]. *Optics Letters*, 2019, **44**(5):1257-1260.
- [63] RIEDEL R, ROTHHARDT J, BEIL K, *et al.* Thermal properties of borate crystals for high power optical parametric chirped-pulse amplification[J]. *Optics Express*, 2014, **22**(15):17607-17619.
- [64] ROTHHARDT C, ROTHHARDT J, KLENKE A, *et al.* BBO-sapphire sandwich structure for frequency conversion of high power lasers[J]. *Optical Materials Express*, 2014, **4**(5):1092-1103.
- [65] CAMPER A, PARK H, LAI Y, *et al.* Tunable mid-infrared source of light carrying orbital angular momentum in the femtosecond regime[J]. *Optics Letters*, 2017, **42**(19):3769-3772.
- [66] QIAN Jun-yu, PENG Yu-jie, LI Yan-yan, *et al.* Femtosecond mid-IR optical vortex laser based on optical parametric chirped pulse amplification[J]. *Photonics Research*, 2020, **8**(3):421-425.
- [67] LIU Hai-gang, LI Hui, ZHENG Yuan-lin, *et al.* Nonlinear frequency conversion and manipulation of vector beams[J]. *Optics Letters*, 2018, **43**(24):5981-5984.