



·新型激光技术专题·综述·

## 飞秒激光中脉冲内差频技术进展\*

杨雪梅, 田坎, 何林珍, 王炜哲, 梁厚昆

(四川大学 电子信息学院, 成都 610065)

**摘 要:** 中红外激光具有多种优势, 可以广泛地用到生物、化学、物理等科学研究领域。通常采用直接激励和非线性频率转换这两种方式产生中红外激光, 然而, 为了实现中红外宽带超短脉冲的发射, 非线性频率下转换是现今的唯一方法。脉冲内差频(IP-DFG)是一种简单的非线性频率转换方法, 文中对中红外 IP-DFG 的工作做了详细的回顾, 从中红外激光晶体和基于 IP-DFG 产生具有超宽带的中红外超短脉冲的先进工作两个方面做了综述和评论, 分别比较了非线性晶体类型、驱动脉冲源、产生超宽带中红外脉冲的光谱范围、转化效率等, 并在最后讨论和阐明了 IP-DFG 领域面临的机遇和挑战。

**关键词:** 中红外激光; 非线性频率转换; 脉冲内差频; 非线性晶体类型; 驱动脉冲源

中图分类号: TN216

文献标志码: A

doi: 10.11884/HPLPB202133.210246

## Progress on intra-pulse difference frequency generation in femtosecond laser

Yang Xuemei, Tian Kan, He Linzhen, Wang Weizhe, Liang Houkun

(College of Electronics and Information Engineering, Sichuan University, Chengdu 610065, China)

**Abstract:** Mid-infrared (MIR) lasers have various advantages and can be widely used in either fundamental research fields or practical applications such as strong-field physics, molecular sensing and minimally-invasive tissue ablation. Generally, there are two categories of methods to generate MIR laser emission: one is direct lasing and the other is nonlinear frequency down-conversion. However, for the ultra-broadband few-cycle MIR generation, nonlinear down-conversion is the only available method. Intra-pulse Difference Frequency Generation (IP-DFG) is a simple method of nonlinear frequency conversion. In this article, the IP-DFG technology for the ultra-broadband MIR few-cycle pulses generation is reviewed. Different MIR nonlinear crystals, various driving laser sources, the spectral coverage of the MIR-IPDF output, and the conversion efficiency are compared and discussed. Last but not least, the prospects and challenges of MIR IP-DFG are presented.

**Key words:** mid-infrared laser; nonlinear frequency conversion; intra-pulse difference frequency generation; types of nonlinear crystal; the driving pulse

中红外(MIR)波长通常定义为 $2\sim 20\ \mu\text{m}$ (波数为 $500\sim 5000\ \text{cm}^{-1}$ ), 由于其独特的性能和广阔的应用前景, 该波段的激光器引起了全世界研究人员的极大关注。MIR 激光的主要特征可以概括为以下三个方面: 首先, 大多数分子、毒剂、空气、水、土壤污染物和爆炸物的振动峰都落在 MIR 谱带中, 其振动引起的光谱变化可以与分子一一对应, 这也称为“分子指纹”法。因此, MIR 相干光谱法用于高保真和高灵敏度分子检测和物质鉴别的独特方法。与具有非相干光源的吸收光谱相比, MIR 激光器在宽光谱范围内提供更高的光谱亮度、更窄的光谱梳状线宽度和更稳定的光谱线结构。高分辨率、高灵敏度、高信噪比是对光谱测量的基本要求, 因此, MIR 激光是用于高精度分子光谱检测的理想光源。其次, MIR 区域包含两个重要的大气光学透明窗口, 即 $2\sim 5.5\ \mu\text{m}$ 和 $8\sim 14\ \mu\text{m}$ 波段, 此波段对大雾、烟尘等具有较高的透过能力, 在空气中传输时受分子散射小, 大部分的光信息能在这个波段几乎没有损耗地通过, 这使得 MIR 波长在光检测和测距以及特殊大气通信领域很重要<sup>[1]</sup>。第三, MIR 波长涵盖了水、蛋白质、磷酸基团和其他物质的强共振峰, 用中红外激光作用于这些物质时, 产生的切面光滑平整, 对周围的组织

\* 收稿日期: 2021-06-22; 修订日期: 2021-09-22

基金项目: 国家自然科学基金项目(62075144); 四川大学工科特色团队基金项目(2020SCUNG105)

联系方式: 杨雪梅, yangxuemei@stu.scu.edu.cn。

通信作者: 梁厚昆, hkliang@scu.edu.cn。

伤害很小,因此 MIR 激光在生物医学应用(例如软组织和硬组织的微创外科手术)中具有广阔的前景。此外, MIR 激光器还可在激光制导、红外激光雷达、精密加工<sup>[2]</sup>、太赫兹产生<sup>[3]</sup>和 X 射线产生<sup>[4]</sup>中找到关键的应用前景。

近年来,越来越多的研究人员将目光聚焦于中红外激光器的研发上。目前与整个激光器市场相比,中红外激光器市场相对较小,但其增长速度比整个激光器市场快近四倍,这使得中红外激光器市场成为最有活力的市场之一。对于 MIR 固态激光器,主要有两种产生 MIR 脉冲的技术,即直接发射掺杂离子和非线性频率下转换。前者基于以下过程:在能量积累后会激发增益介质,而输出波长取决于增益介质的能级结构。此过程的最大问题是 MIR 波长中的弛豫能量与声子振动能量重合,这会降低增益并阻碍 MIR 波长中的激光发射过程。后者基于参量频率转换,在非线性晶体中,当满足相位匹配条件后产生 MIR。在此过程中,没有热量积累,可以通过宽带相位匹配来实现宽带激光放大,从而支持产生几个光学周期的 MIR 脉冲。目前,非线性参量下转换已成为扩展新激光光谱,产生涵盖深紫外、可见光、近红外、中红外和 THz 波长范围的脉冲的必不可少的手段。

IP-DFG 技术是产生少周期、宽频带、相位稳定中红外激光脉冲的关键技术,与光学整流有关,利用宽带脉冲中两个合适的频谱分量的相位匹配,产生中红外闲频光,确保输出波形的相位稳定,并在中心频率下,产生宽带、低频电磁辐射。在过去 20 年,超快激光经历了快速的发展,研究人员发明了新的辐射源和先进的光谱技术,使 IP-DFG 技术有了巨大的发展,成为产生具有稳定的载波-包络相位脉冲的关键技术。光路简单,不需要复杂的谐振腔,不需要准确地控制谐振腔的长度,不需要精准地控制时间延迟,能够产生脉冲包络相位稳定的宽带短脉冲,凭借着这些优点,IP-DFG 技术受到了越来越多的科研人员的青睐。在本文中,我们回顾了典型的 MIR 非线性晶体,然后总结了通过 IP-DFG 产生 MIR 的相关工作。

## 1 中红外激光晶体

MIR 脉冲生成和放大中常用的非线性晶体主要包括氧化物晶体和非氧化物晶体两大类。KTiOAsO<sub>4</sub>(KTA)、KTiOPO<sub>4</sub>(KTP)和 LiNbO<sub>3</sub>(LNO),属于氧化物晶体,以及 ZnGeP<sub>2</sub>(ZGP)、CdSiP<sub>2</sub>(CSP)、AgGaS<sub>2</sub>(AGS)、AgGaSe<sub>2</sub>(AGSe)、GaSe、BaGa<sub>4</sub>S<sub>7</sub>(BGS)、BaGa<sub>4</sub>Se<sub>7</sub>(BGSe)、LiGaS<sub>2</sub>(LGS)、LiGaSe<sub>2</sub>(LGSe)等属于非氧化物晶体。通常,氧化物晶体的损伤阈值和机械硬度性能更好,但是其透明范围一般小于 5 μm,对于超过 5 μm 的光波具有强烈的吸收,这不利于长波长 MIR 脉冲的产生。长波长红外脉冲的产生中通常使用非氧化物晶体,其有效非线性系数较高,透明度范围可以达到 10 μm 以上。但是,此类晶体的带隙能量通常约为 2 eV,这使得双光子吸收不可忽略,并且当约 1 μm 的波长以高峰值功率泵浦时,其损伤阈值显著降低。除了上述 MIR 非线性晶体外,周期性极化的晶体也已成为新兴的晶体,例如周期性极化的 LiNbO<sub>3</sub>(PPLN)、取向图案化的 GaAs(OP-GaAs)和取向图案化的 GaP(OP-GaP)都已经广泛地运用于产生 MIR。MIR 非线性晶体具有出色的准相位匹配带宽和较大的非线性系数。表 1 总结并比较了常用 MIR 非线性晶体的光学性质,例如透明范围、有效非线性系数和能带带隙<sup>[1,5]</sup>。

表 1 不同非线性晶体的比较

Table 1 Comparison of different MIR nonlinear crystals

nonlinear crystal	transparency/μm	nonlinear coefficient/(pm·V <sup>-1</sup> )	bandgap/eV
KTA	0.35~5	1.97	3.6
LNO	0.33~5.5	4.11	4.2
BBO	0.19~3	1.48	2.25
AGS	0.5~13	13.7	2.7
AGSe	0.75~15	58	1.77
BGSe	0.47~18	24.3	2.64
CSP	0.5~9	85.4	2.45
ZGP	1.8~12	70	2
GaSe	0.8~14	70~90	2.1
LGS	0.32~11.6	5.9	3.76
OP-GaAs	0.9~17	94	2.1
OP-GaP	0.57~12	70	2.26

## 2 基于脉冲内差频生成中红外脉冲实验

少周期、载波包络相位稳定的中红外激光脉冲在生命科学和工业生产中有大量的重要应用。2~20 μm 的高能量、少周期中红外光源引起了广大科研人员的兴趣,尤其是在固体或气体中高次谐波产生<sup>[6]</sup>、激光诱导电子衍射、超快分子动力学成像<sup>[7]</sup>、介质和半导体的波控超快电子<sup>[8]</sup>、超宽带超连续谱<sup>[9]</sup>的产生等方面。脉冲内差频是生成中红外脉冲的关键技术,OPA、OPCPA 技术需要两束光,一路信号光,一路泵浦光,两路光在时间上要精准的重合,才有可能实现闲频光输出,这增加了光路的复杂性和操作的困难程度。而脉冲内差频的泵浦光和信号光在同一脉冲内,只需要一束光作用于晶体,当晶体在特殊的相位匹配角,脉冲内长波长与短波长相互作用,产生闲频光。脉冲内差频技术主要有以下几个优点:第一,信号光和泵浦光在同一光束内,不需要额外信号脉冲的产生;第二,与光学参量放大、差频等技术相比能够简化装置,并且精确地控制时间延迟;第三,泵浦光与信号光之间无时间抖动;第四,由于泵浦光和信号光来自同一脉冲,产生的闲频光有稳定的载波-包络相位。表2 展现了基于脉冲内差频技术产生宽带中红外脉冲的最新成果。

表 2 MIR 激光脉冲的最新成果  
Table 2 The latest results of MIR laser pulses

pump wavelength/μm	nonlinear crystal	IP-DFG spectral span/μm	conversion efficiency	reference
1.03	LGS	8~11	0.037	[10]
1.57	OP-GaP	4~12	0.071	[12]
1.9	GaSe	5~20	0.13	[13]
2	GaSe	7.3~16.5	1.4	[14]
2	ZnSe	2.7~20	0.51	[16]
2.1	AGSe	7~11	0.8	[17]
2.5	GaSe	4.3~17.6	0.22	[18]
2.5	ZGP	5.8~12.5	3.3	[18]
1.9	GaSe	2.7~17	0.13	[19]
3	GaSe	6~13.2	5.3	[20]
3.2	BGGSe	0.34~40	2	[21]

在 2015 年, I. Pupeza 等人完成了一项先进的有关中红外 IP-DFG 的工作,实现了宽带、载波包络相位稳定脉冲输出。如图 1 是基于 Yb:YAG 的 MIR 生成和检测设置,实验中采用有效非线性系数很大的 LGS 晶体为非线性晶体,厚度为 1 mm,采用高平均功率的 Yb:YAG 薄盘振荡激光器作为泵浦源,输出脉宽为 250 fs、重复频率为 100 MHz、

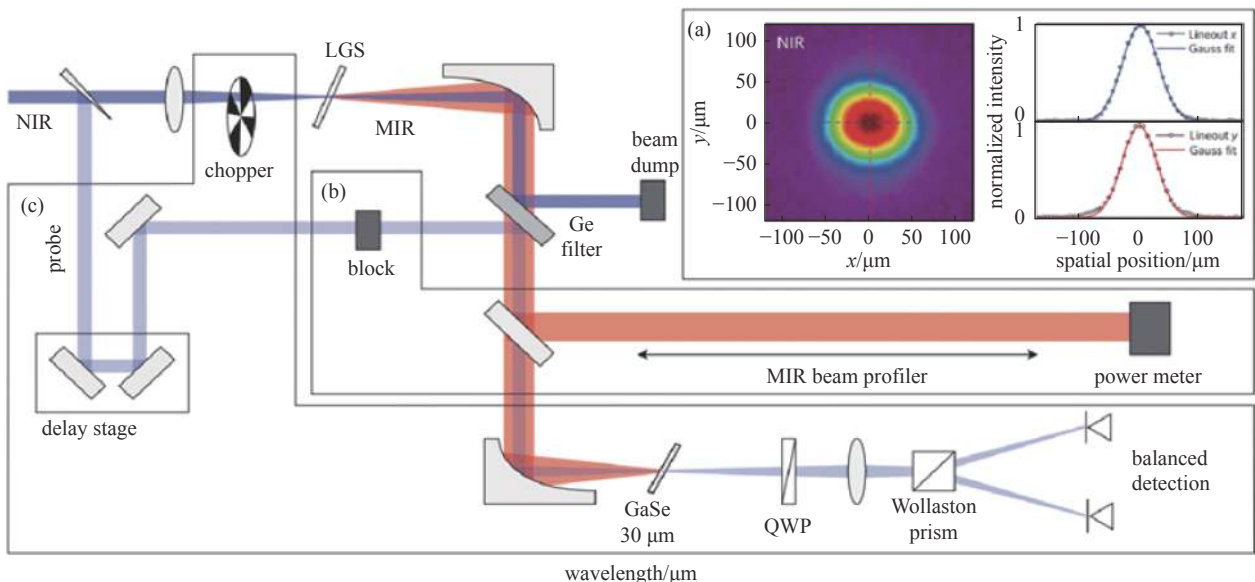


Fig. 1 MIR generation and detection setup

图 1 基于 Yb:YAG 的 MIR 生成和检测设置

平均功率为 90 W、中心波长为 1030 nm 的脉冲, 经过焦距为 250 mm 的聚焦透镜, 会聚到 LGS 晶体, 发生 IP-DFG, 产生宽带的中红外激光。采用电光样品检测(EOS)的方式检测产生脉冲的振幅和相位, 获得输出功率为 0.1 W、光谱范围为 6.8~16.4  $\mu\text{m}$ 。中心波长为 11.5  $\mu\text{m}$ , 测量得到脉冲宽度为 66 fs。通过验证性实验证明, IP-DFG 技术为产生高平均功率和高能量中红外脉冲提供了简单有效的方法, 用于分子光谱学、超快分子动力学成像以及振动动力学的时域相干控制<sup>[10]</sup>。

在过去十年中, 研究人员引入光频梳光谱<sup>[11]</sup>替代傅里叶变换红外光谱仪(FTIR), 其特点是光谱灵敏度高、快速获取数据、在长距离传输中没有数据丢失、传播速度快、光谱范围宽。但是, 大多数频率梳状源的波长不长, 一般在 6  $\mu\text{m}$  以下, 功率不高, 在 W 量级。H. Timmers 团队提出了一个强大的方案, 生成稳定的少周期宽频带长波长中红外光学频率梳。其实验装置如图 2 所示, 由 100 MHz 掺铒锁模振荡器产生的飞秒脉冲被放大到 3.5 nJ 的脉冲能量, 对应于 350 mW 的平均功率。放大器的压缩输出脉冲直接耦合到正常色散、高非线性光纤, 其中脉冲经历光谱展宽, 产生约 600 nm 的带宽。从光纤出来的正啁啾脉冲经过具有反常色散楔形熔融石英进行时间压缩, 通过离轴抛物镜会聚到 OP-GAP 晶体中, 发生 IP-DFG, 产生宽带中红外脉冲, 频谱宽度为 4~12  $\mu\text{m}$ , 并使用频率分辨光学门控进行表征, 经过测量得到脉冲宽度为 10.6 fs<sup>[12]</sup>。

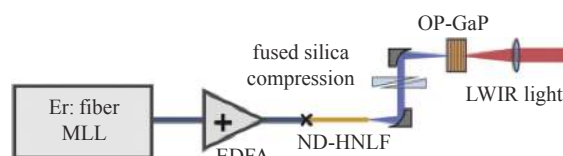


Fig. 2 Mid-infrared generation based on OP-Gap

图 2 基于 OP-Gap 的中红外生成装置

高斯光束在光纤中传播的时候, 由于三阶非线性光学效应, 强激光作用于光纤, 发生自相位调制, 光脉冲在时域压缩、频域展宽。张杰等人发明了一种新型的克尔锁模的 Ho:YAG 薄盘振荡器, Ho:YAG 薄盘由掺杂光纤激光器以中心波长为 1908 nm 的方式泵浦, 与传统的 Ho/Tm 共掺杂系统相比, 量子缺陷要小得多。泵浦光不是直接作用于薄板, 而是首先通过直径为 550  $\mu\text{m}$  的多模光纤传输, 目的是创建一个均匀的泵浦点, 然后将涡轮光纤激光器从泵浦头的后反射中分离出来。激光腔具有四通配置, 这意味着激光束每次往返通过圆盘八次。这种往返增益的提高, 获得了更高的输出耦合比, 从而提高了效率。使用克尔介质和硬孔径来实现克尔透镜模式锁定。通过硅芯光子晶体光纤中泵浦脉冲的孤子自压缩产生少周期的脉冲, 以及随后由 IP-DFG 产生长波长中红外脉冲, 从而产生了两个倍频程的频谱, 平均功率为 24 mW<sup>[13]</sup>。如图 3 所示, 是自压缩阶段, 为 MIR 生成提供驱动脉冲。来自振荡器的脉冲通过一个  $f=8$  mm 的非球面透镜耦合到一个硅芯光子晶体光纤中。该光纤长 2.3 cm, 纤芯直径为 12  $\mu\text{m}$ 。在光纤的输出端使用一个有效焦距为 25 mm 的镀金离轴抛物镜进行准直, 再使用一个离轴抛物镜将光束会聚在 GaSe 中, 发生 IP-DFG, 产生 MIR, 通过测量得到光谱范围为 5~20  $\mu\text{m}$ 。

以 2  $\mu\text{m}$  作为泵浦源比 0.8  $\mu\text{m}$  或者 1  $\mu\text{m}$  用作泵浦源具有更大的优势, 第一, 量子效率更高, 可以得到更高的转换效率; 第二, 更加适合泵浦带隙能量相对较低的非氧化物晶体, 不会产生双光子吸收。O.Novak 等人在 2018 年第

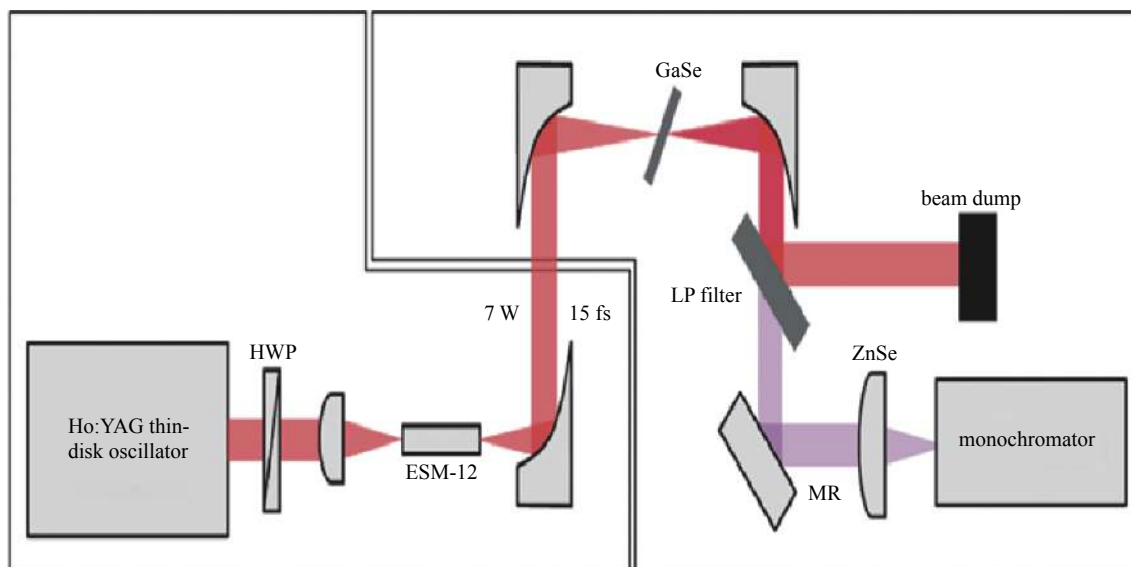


Fig. 3 Self-compression and MIR generation setup

图 3 自压缩和 MIR 生成设置



一次实现了由  $2\ \mu\text{m}$  泵浦, 在 AGSe 晶体中通过 IP-DFG 实现载波包络相位稳定的 MIR 输出, 其波长范围为  $7\sim 11\ \mu\text{m}$ , 如图 4 所示<sup>[17]</sup>。  $2.1\ \mu\text{m}$  泵浦光使用可变密度滤波器衰减到  $250\ \mu\text{J}$  的脉冲能量。使用半波片 ( $\text{WPH10M-2020}$ , Thorlabs) 在  $2020\ \text{nm}$  处产生半波延迟, 将光束分成晶体中的 o 光和 e 光, 用在 AGSe 中发生 type II IP-DFG。然后通过长焦距透镜 ( $f=1025\ \text{mm}$ ) 聚焦。将 AGSe 晶体放置在焦点后面约  $300\ \text{mm}$  处, 以避免晶体损坏, 估计的峰值强度约为  $200\ \text{GW}/\text{cm}^2$ 。  $2.1\ \mu\text{m}$  光波在进入探测装置前, 被两个长通滤波器 (LPF) 滤波, 其截止波长为  $4.5\ \mu\text{m}$  和  $2.4\ \mu\text{m}$ 。离轴抛物线将光束耦合到多模中红外光纤, 传输范围为  $3\sim 15\ \mu\text{m}$ 。该光纤将通过液氮冷却 HgCdTe (MCT) 检测仪和扫描型光栅单色仪 (Horiba) 连接。

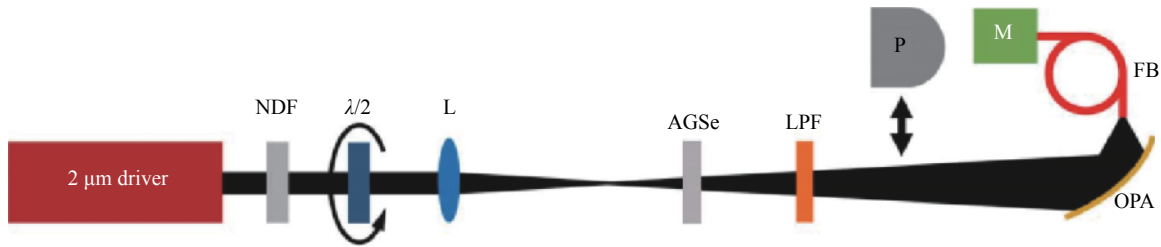


Fig. 4 Schematic of the experimental setup for IPDFG  
图 4 IP-DFG 的实验设置示意图

在 IP-DFG 过程中, 信号光和泵浦光之间的相位匹配是影响转化效率的一个重要因素, 常常需要晶体放在一个合适的角度。1993 年, 日本的 M. Yamada 等人首次利用外加电场极化方法对铁电晶体的铁电实现周期性极化反转, 调整其非线性系数使之满足准相位匹配条件, 成功地实现了倍频输出, 由于这种方法简便易行, 迅速掀起了这一研究领域的研究热潮。准相位匹配也经常用于非双折射晶体, 与常规的双折射晶体不同, 多晶元素中的随机相位匹配不需要特定的晶体方向或输入光束偏振, 其中晶体的方向被周期性地倒置, 目的是大大增强所产生的信号。实现准相位匹配的晶体目前常见的有以下几种: 铌酸锂 ( $\text{LiNbO}_3$ )、钽酸锂 ( $\text{LiTaO}_3$ )、铌酸钾 ( $\text{KNbO}_3$ )、磷酸氧钛钾 ( $\text{KTiOP}_4$ , KTP)、铌酸锶钡 (SBN)、砷酸氧钛钾 ( $\text{KTiOAsO}_4$ , KTA) 以及掺镁铌酸锂 ( $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ )、硒化锌 ( $\text{ZnSe}$ ) 和硫化锌 ( $\text{ZnS}$ ) 等晶体。J. Zhang 等人第一次采用准相位匹配技术, 使用 Ho:YAG 薄盘振荡器输出  $2\ \text{m}$  泵浦源, 利用非线性晶体 ZnSe 和 ZnS 实现了脉冲内差频 (IP-DFG)。如图 5 是实验装置图, 将该方案与基于 Yb:YAG 薄盘激光器产生的  $1\ \mu\text{m}$  泵浦源做了比较, 其效率要高得多。用  $2\ \text{m}$  泵浦源产生  $16\ \text{mW}$  以上功率, 可以用 HgCdTe 探测器探测, 便于进一步运用, 使用多晶材料实现了单一光束转换, 生成了少周期、包络相位稳定脉冲<sup>[16]</sup>。

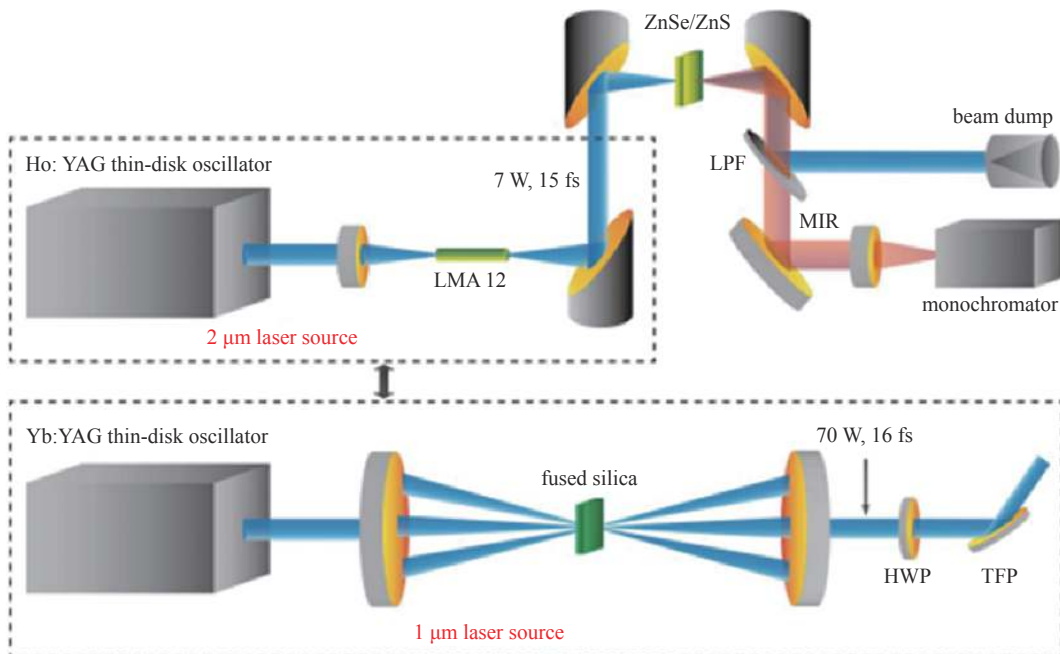


Fig. 5 IP-DFG based on quasi-phase matching  
图 5 基于准相位匹配的 IP-DFG 实验装置

基于同步加速器的 FTIR 技术利用非相干热辐射源测量分析物质, 广泛的用于分析化学、环境检测和生命科学等方面, 但是同步加速器体积巨大、结构复杂、光学元件多, 使用极其不方便, 限制了该技术的发展。基于具有更大非线性系数的中红外非线性晶体, 例如 ZGP, GaSe 和 AGS 等, 许多研究小组进行了以  $2\ \mu\text{m}$  波长为泵浦的 IP-DFG 实验, 获得了便携、宽带的相干中红外光源。C. Gaida 等人展示了相干中红外辐射源, 其平均功率、峰值功率和光谱覆盖范围都有新的突破。如图 6 所示, 来自抗谐振空心光纤 (ARHCF) 的自压缩脉冲由一个  $f=50\ \text{mm}$  离轴抛物镜准直, 通过  $f=300\ \text{mm}$  的  $\text{CaF}_2$  透镜聚焦在一个厚度为  $1\ \text{mm}$  GaSe 晶体上, 发生 IP-DFG, 产生中红外辐射。在 ARHCF 产生的最大泵浦功率  $31.4\ \text{W}$  下, 测量了中红外平均功率为  $450\ \text{mW}$ , 频谱范围为  $7.3\sim 16.5\ \mu\text{m}$ , 转换效率为  $1.4\%$ 。通过比较发现, 基于 IP-DFG 的 MIR 的亮度在  $7.5\sim 15\ \mu\text{m}$  波长范围内比大型设备同步加速器 (例如 Diamond B22 IR 光束线<sup>[15]</sup>) 高 4 个数量级<sup>[14]</sup>。

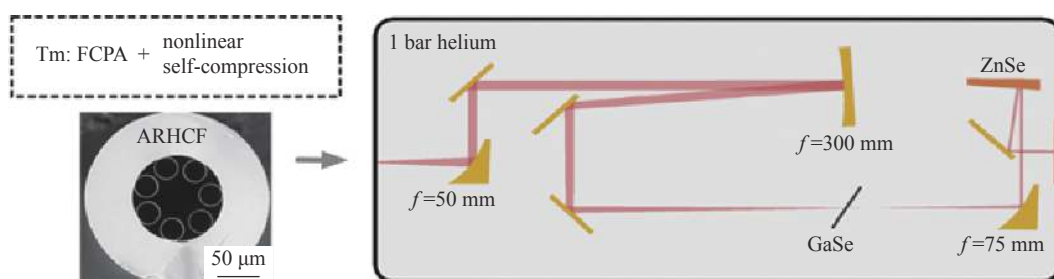


Fig. 6 Schematic experimental setup for IPDFG

图 6 相干中红外辐射源的实验原理图

IP-DFG 过程的效率与通过光学整流生成 THz 类似。一个重要的评价指标是有效相互作用长度  $L_{\text{eff}}$ , 这主要受到泵浦和中红外脉冲之间的群速度不匹配的限制。在大多数非线性晶体中, 当泵浦光波长增加时, 这种不匹配会变窄, 有效相互作用长度会变长。例如, 在 GaSe 晶体中, 假设 IP-DFG 产生中心波长约为  $10\ \mu\text{m}$ , 泵浦脉冲持续时间为  $15\ \text{fs}$ ,  $1\ \mu\text{m}$  泵浦源的有效相互作用长度为  $22\ \mu\text{m}$ ,  $2.5\ \mu\text{m}$  泵浦源的有效相互作用长度为  $1.5\ \text{mm}$ 。使用更长波长作为泵浦源, 有效相互作用长度变长, 使 IP-DFG 转换效率提高近 5000 倍。长波长泵浦的另一个关键优势是可以获得在宽光谱范围透射率更高和性能更好的非线性材料。此外, 随着泵浦光子能量的降低, 多光子吸收所产生的寄生效应也大大降低了。S. Vasilyev 等人演示了如何使用紧凑的  $2.5\ \mu\text{m}$  Cr: ZnS MOPA 激光系统作为泵浦来高效产生相干长波长中红外脉冲, 并将其作为泵浦源, 直接产生小于  $20\ \text{fs}$  的脉冲, 无需额外的脉冲压缩。ZGP 晶体适用于产生宽倍程频谱 ( $5.8\sim 12.5\ \mu\text{m}$ ), 输出功率为  $0.15\ \text{W}$ , 光学转换效率为  $3.3\%$ , 而 GaSe 晶体允许 I 和 II 型相位匹配, 虽然具有较低的输出功率 ( $13\ \text{mW}$ ), 但可以覆盖 2 个倍程频谱范围 ( $4.3\sim 17.6\ \mu\text{m}$ )。如图 7 是 IP-DFG 装置的示意图<sup>[18]</sup>。连续掺铈光纤激光器中心波长为  $1569\ \text{nm}$ , 作为泵浦光, 作用于 Cr: ZnS 放大器, 经过放大后产生  $5.9\ \text{W}$  的输出功率, 脉冲宽度为  $20\ \text{fs}$ , 经过布鲁斯特板调整时间参数, 经透镜会聚到非线性晶体上, 发生 IP-DFG, 产生 MIR。

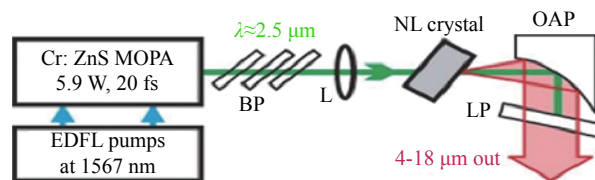


Fig. 7 Schematic of the IP-DFG setup

图 7 IP-DFG 装置的示意图

IP-DFG 产生的最短的 MIR 波长是由输入脉冲的最低频率分量和最高频率分量之间的差值决定的。例如, 要产生波长  $4.5\ \mu\text{m}$  MIR 光, 需要光谱分量具有特定时间间隔的泵浦脉冲, 比如中心波长为  $2.3\ \mu\text{m}$ , 其脉冲持续时间为  $11\ \text{fs}$ 。为了在  $2\ \mu\text{m}$  下产生这种泵浦脉冲, 通常采用专用的非线性脉冲压缩阶段, 这明显增加了实验的复杂性, 降低了装置的可靠性。但是, 通过合适的半导体晶体实现多个参量级联, 能够产生少周期、宽带的 MIR。Q. Wang 等人第一次通过实验证明使用级联 IP-DFG 比单独使用非级联 IP-DFG 能够产生更长的光谱脉冲。实验装置示意图如图 8 所示, 振荡器和放大器都使用 Cr: ZnS 作为增益介质, 能够提供足够短的驱动脉冲。通过进一步利用级联参数效应, 并采用紧凑而成熟的激光系统作为直接泵浦源, 该方案是产生相干宽带 MIR 的最有吸引力的技术之一。从放大器出来的光源在 GaSe 中发生 IP-DFG, 产生了平均功率为  $3.35\ \text{W}$ 、脉冲持续时间为  $28\ \text{fs}$ 、光谱范围为  $2.7\sim 17\ \mu\text{m}$  的中红外激光。为一种更方便实现和更加稳定的产生相干宽带 MIR 辐射的方案开辟了道路, 使 IP-DFG 在新兴的纳米成像、频率梳和时域光谱技术等领域的使用成为可能<sup>[19]</sup>。

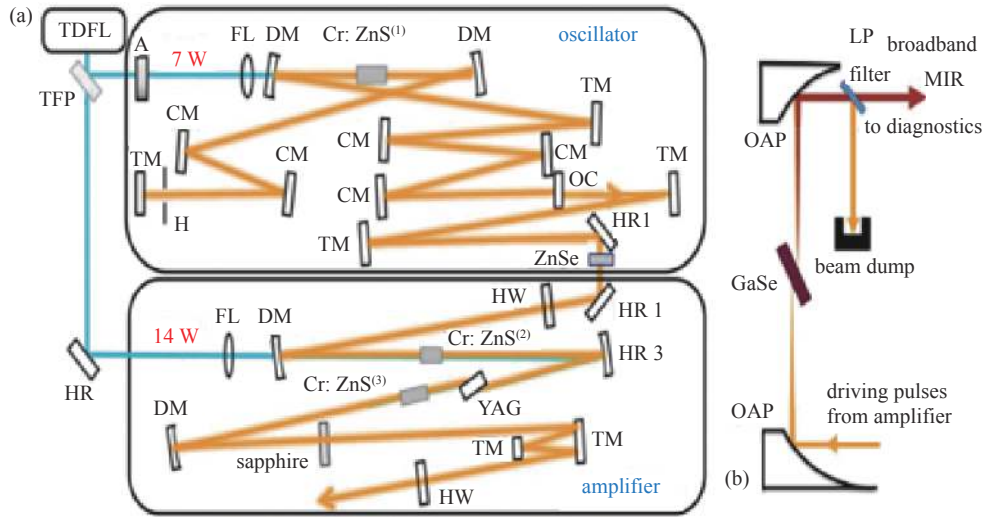


Fig. 8 (a) Kerr-lens mode-locked Cr:ZnS oscillator and amplifiers, (b) Schematic of the MIR generation setup  
图 8 (a) 克尔透镜锁模 Cr: ZnS 振荡器和放大器 (b) 是 MIR 生成设置的示意图

高功率脉冲可以用于固体高次谐波和超连续谱光源的产生，脉冲光束呈现良好的高斯型可以用于强场物理。通过研究发现，使用长波长泵浦光可以减少量子效应，从而提高 IP-DFG 的泵浦转换效率。在 2019 年，H.K. Liang 教授的科研团队研究了以中心波长为  $3\ \mu\text{m}$ ，脉冲宽度为 35 fs，重复频率为 10 kHz 的脉冲为泵浦光在 YAG 晶体中产生超连续谱，通过透镜聚焦到 GaSe 中，发生 IP-DFG 产生 MIR。如图 9 所示，MIR 输出具有  $5\ \mu\text{J}$  的脉冲能量和 50 mW 的平均功率，光谱范围为  $6\sim 13.2\ \mu\text{m}$ ，转换效率高达 5.3%，创历史新高<sup>[20]</sup>。

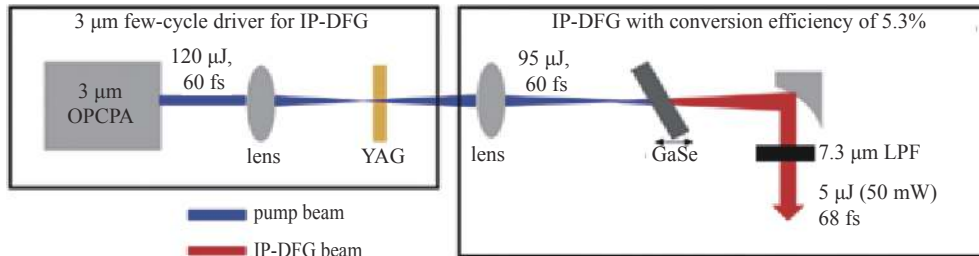


Fig. 9 Schematic of experimental setup  
图 9 实验装置示意图

$\text{BaGa}_2\text{GeSe}_6$  (BGGSe) 是一种新的高效非线性晶体，它产生的光谱范围可以到中红外甚至是太赫兹，Ugaitz Elu 团队将 ARR-PCF 与 IP-DFG 结合，利用一块 BGGSe 作为非线性晶体，不需要在不同的非线性晶体之间切换，产生  $0.34\sim 40\ \mu\text{m}$  相干输出，其持续时间小于三个光学周期，实验装置图如图 10 所示。脉冲包络相位稳定，脉冲持续时间短，紫外和太赫兹的峰值功率高，为时域非线性和多维光谱开辟了全新的前景。宽带相干光谱满足了对没有光谱间隙的可调源的需要，它支持新的多模态测量方法，例如分子光谱学、物理化学或固态物理学。高功率允许在紫外和太赫兹光谱范围内达到  $\text{TW}/\text{cm}^2$  范围内的峰值强度，从而使强场和阿秒科学成为可能，并允许探索新的现象，如光诱导相变、超导性或拓扑物理<sup>[21]</sup>。

Daniel M. B. Lesko 等人提出了一种简便、高强度和可调谐的中红外实验方案，原理图如图 11，使用超低噪声掺铒光纤梳状技术产生 mW 级的峰值功率、几个光学周期脉冲。该脉冲仅利用非线性晶体的二阶非线性效应，发生 IP-DFG，就能够产生超宽带相干源，这将使高功率光谱成像和纳米镜检查技术成为可能，并有机会研究超宽带光谱带宽和时间上的化学和生物过程<sup>[22]</sup>。

### 3 结论

中红外激光器在军事、工业、医学、通信等领域都有重要的运用，随着科学技术的发展，中红外激光器经历了快速的发展。本文中，我们介绍并比较了相关的非线性晶体，IP-DFG 技术一般使用 LGS、GaSe、ZnSe 等非氧化物晶体作为非线性晶体。这些晶体通常透射带宽很宽，有效非线性系数很大，有很高的损伤阈值。然后，研究和总结了飞秒激光器中脉冲内差频技术。脉冲内差频技术通常使用  $1\ \mu\text{m}$  或者  $2\ \mu\text{m}$  作为驱动源， $2\ \mu\text{m}$  驱动源量子效率更



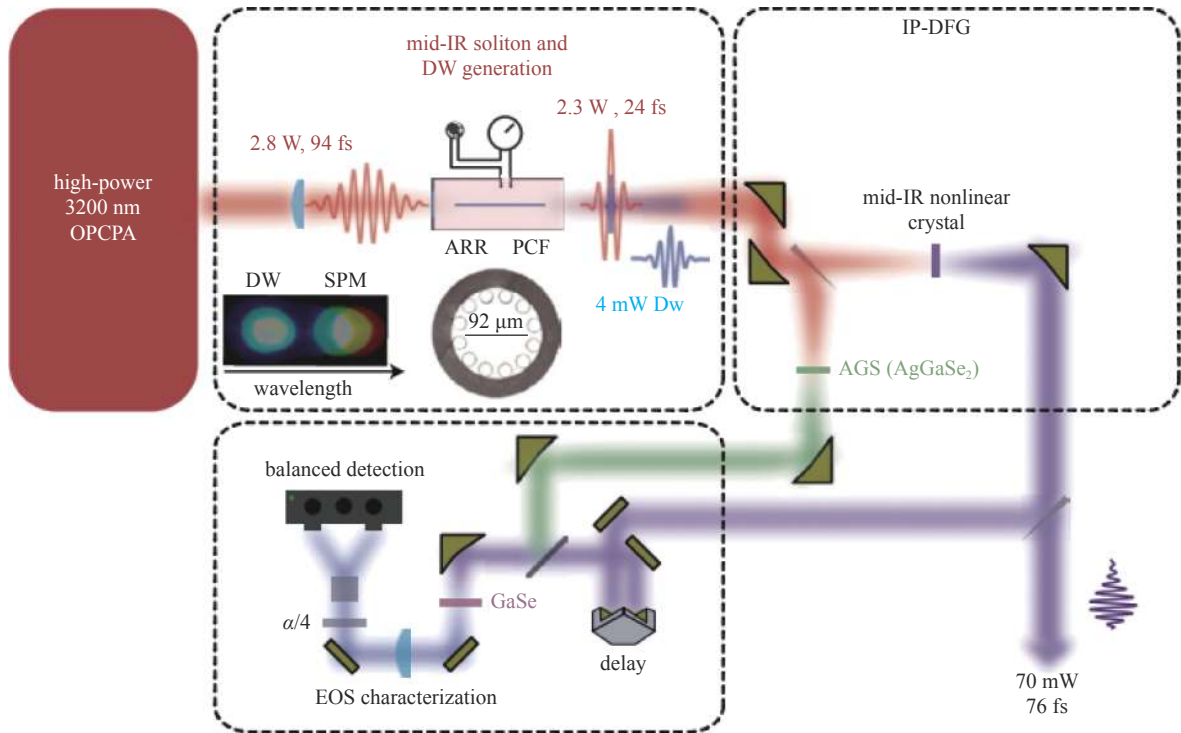


Fig. 10 Schematic of the system layout adopted by Ugaitz Elu et al

图 10 实验原理图

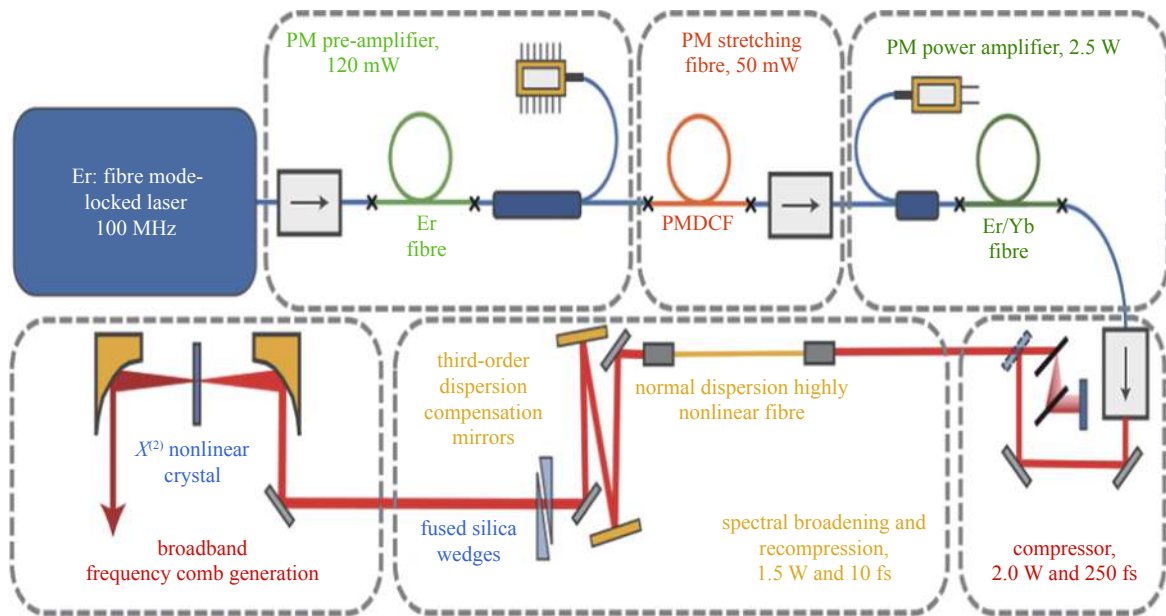


Fig. 11 Schematic of the system layout adopted by Dauiel Lesko et al

图 11 实验原理图

高,有更高的转化效率,更适合泵浦带隙能量相对较低的非氧化物晶体,不会有双光子吸收。并且研究发现使用更长波长的光脉冲作为驱动源可以明显提高转化效率。通过研究发现,利用 IP-DFG 技术,中红外激光器的波长长达  $20\ \mu\text{m}$ ,采用  $3\ \mu\text{m}$  泵浦实现 5.3% 的转化效率,这是对中红外激光器的运用和发展的一极大优势。但是中红外脉冲辐射想要进一步发展还存在许多问题,例如,(1)怎样采用更易实现的近红外波长泵浦源产生高效率的 IP-DFG;(2)亟待提高具有大带隙能量的非线性晶体的质量,包括损伤阈值、透射范围和非线性系数等参数;(3)怎样利用更简单的方法获得足够产生 IP-DFG 的泵浦带宽;(4)随着新型的长波长宽带飞秒泵浦激光的发展,IP-DFG 的效率也将随之提升。相信在未来,随着研究人员的进一步探索和技术能力的提高,一定会有光谱范围更宽、脉冲更窄、峰值功率更高的中红外激光器诞生,也会有拓展出更宽的运用前景。



## 参考文献：

- [1] 尹文龙, 康彬, 邓建国. 新型硫族化合物在中红外非线性光学晶体方面研究进展[J]. *强激光与粒子束*, 2014, 26: 071009. (Yin Wenlong, Kang Bin, Deng Jianguo. Research progress of new chalcogenides in mid-infrared nonlinear optical crystals[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2014, 26: 071009)
- [2] Li Lingqi, Nie Weijie, Li Ziqi, et al. All-laser-micromachining of ridge waveguides in LiNbO<sub>3</sub> crystal for mid-infrared band applications[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7: 7034.
- [3] Manceau J M, Loukakos P A, Tzortzakos S. Direct acoustic phonon excitation by intense and ultrashort terahertz pulses[J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 97: 251904.
- [4] Teichmann S M, Silva F, Cousin S L, et al. 0.5-keV soft X-ray attosecond continua[J]. *Nature Communications*, 2016, 7: 11493.
- [5] 鲁燕华, 王卫民, 彭跃峰, 等. 磷锗锌光学参量振荡器技术研究[J]. *强激光与粒子束*, 2006, 18(8): 1261-1264. (Lu Yanhua, Wang Weimin, Peng Yuefeng, et al. Zinc germanium phosphide optical parametric oscillator[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2006, 18(8): 1261-1264)
- [6] Ghimire S, DiChiara A D, Sistrunk E, et al. Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal[J]. *Nature Physics*, 2011, 7(2): 138-141.
- [7] Blaga C I, Xu Junliang, DiChiara A D, et al. Imaging ultrafast molecular dynamics with laser-induced electron diffraction[J]. *Nature*, 2012, 483(7388): 194-197.
- [8] Schubert O, Hohenleutner M, Langer F, et al. Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations[J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(2): 119-123.
- [9] Petersen C R, Möller U, Kubat I, et al. Mid-infrared supercontinuum covering the 1.4–13.3  $\mu\text{m}$  molecular fingerprint region using ultra-high NA chalcogenide step-index fibre[J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(11): 830-834.
- [10] Pupeza I, Sánchez D, Zhang Jinwei, et al. High-power sub-two-cycle mid-infrared pulses at 100 MHz repetition rate[J]. *Nature Photonics*, 2015, 9(11): 721-724.
- [11] Keilmann F, Gohle C, Holzwarth R. Time-domain mid-infrared frequency-comb spectrometer[J]. *Optics Letters*, 2004, 29(13): 1542-1544.
- [12] Timmers H, Kowligy A, Lind A, et al. Molecular fingerprinting with bright, broadband infrared frequency combs[J]. *Optica*, 2018, 5(6): 727-732.
- [13] Zhang Jinwei, Mak K F, Nagl N, et al. Multi-mW, few-cycle mid-infrared continuum spanning from 500 to 2250  $\text{cm}^{-1}$ [J]. *Light: Science & Applications*, 2018, 7: 17180.
- [14] Yumoto M, Saito N, Lin Taichen, et al. High-energy, nanosecond pulsed Cr: CdSe laser with a 2.25-3.08  $\mu\text{m}$  tuning range for laser biomaterial processing[J]. *Biomedical Optics Express*, 2018, 9(11): 5645-5653.
- [15] 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.
- [16] Zhang Jinwei, Fritsch K, Wang Qing, et al. Intra-pulse difference-frequency generation of mid-infrared (2.7-20  $\mu\text{m}$ ) by random quasi-phase-matching[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(12): 2986-2989.
- [17] Novák O, Krogen P R, Kroh T, et al. Femtosecond 8.5  $\mu\text{m}$  source based on intrapulse difference-frequency generation of 2.1  $\mu\text{m}$  pulses[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(6): 1335-1338.
- [18] 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- $\mu\text{m}$  pulses[J]. *Optica*, 2019, 6(1): 111-114.
- [19] Wang Qing, Zhang Jinwei, Kessel A, et al. Broadband mid-infrared coverage (2–17  $\mu\text{m}$ ) with few-cycle pulses via cascaded parametric processes[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(10): 2566-2569.
- [20] Liu Kun, Liang Houkun, Qu Shizhen, et al. High-energy mid-infrared intrapulse difference-frequency generation with 5.3% conversion efficiency driven at 3  $\mu\text{m}$ [J]. *Optics Express*, 2019, 27(26): 37706-37713.
- [21] Elu U, Maidment L, Vamos L, et al. Seven-octave high-brightness and carrier-envelope-phase-stable light source[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(4): 277-280.
- [22] Lesko D M B, Timmers H, Xing Sida, et al. A six-octave optical frequency comb from a scalable few-cycle erbium fibre laser[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(4): 281-286.