

啁啾脉冲光学参量振荡器及宽谱中红外激光的产生 (特邀)

刘 沛¹, 衡家兴¹, 张兆伟^{1,2*}

1. 华中科技大学 光学与电子信息学院, 湖北 武汉 430074;
2. 华中科技大学 武汉光电国家研究中心, 湖北 武汉 430074)

摘 要: 宽谱中红外激光光源在红外显微光谱学、环境监测、医疗诊断以及超短脉冲产生等领域有着广阔的应用前景和急迫的需求。聚焦同步泵浦光学参量振荡器 (SPOPO) 的输出光谱带宽, 提出了一种能够有效消除泵浦脉冲宽度对于 SPOPO 宽谱输出性能的限制的运转模式, 即啁啾脉冲光学参量振荡器 (CPOPO)。提出并介绍了基于自相位调制 (SPM) 效应和采用啁啾准相位匹配 (CQPM) 晶体这两种 CPOPO 的具体技术方案。基于周期极化钽酸锂 (PPLN) 晶体成功实现了以宽谱啁啾脉冲运转的 CPOPO, 最终分别获得了覆盖 2.9~4.1 μm (约 30 THz)、功率为 92 mW 和 2.9~5.0 μm (约 44 THz)、功率为 64 mW 的宽谱中红外激光输出。

关键词: 宽谱中红外激光; 同步泵浦光学参量振荡器; 自相位调制; 啁啾准相位匹配

中图分类号: TN24 文献标志码: A DOI: 10.3788/IRLA20201051

Chirped-pulse optical parametric oscillators and the generation of broadband midinfrared laser sources (*Invited*)

Liu Pei¹, Heng Jiaying¹, Zhang Zhaowei^{1,2*}

1. School of Optical & Electronic Information, Huazhong University of Science & Technology, Wuhan 430074, China;
2. Wuhan National Laboratory for Optoelectronics, Huazhong University of Science & Technology, Wuhan 430074, China)

Abstract: Mid-infrared laser sources with broad instantaneous-bandwidth are critical for many applications, including infrared micro-spectroscopy, environmental monitoring, medical diagnosis, and ultra-short pulse generation. In this article, the output spectrum bandwidth from synchronously pumped optical parametric oscillator (SPOPO) was focused on and a scheme, chirped-pulse optical parametric oscillator (CPOPO) was proposed to achieve broadband output beyond the limitation of pump pulse width. The CPOPO with self-phase modulation (SPM) or chirped quasi-phase matching (CQPM) were studied and achieved through period-poled lithium niobate (PPLN) based SPOPO. The outputs covered 2.9-3.9 μm (~27 THz) with power up to 92 mW and 2.9-5.0 μm (~44 THz) with 64 mw, respectively.

Key words: broadband mid-infrared laser; synchronously pumped optical parametric oscillator; self-phase modulation; chirped quasi-phase matching.

收稿日期:2020-10-03; 修订日期:2020-11-29

作者简介:刘沛 (1992-), 男, 博士生, 主要从事光学参量振荡器方面的研究。Email: lp19920915@163.com

衡家兴 (1994-), 男, 博士生, 主要从事光学参量振荡器方面的研究。Email: d201880619@hust.edu.cn

通讯作者:张兆伟 (1976-), 男, 教授, 博士生导师, 博士, 主要从事中红外激光器、光学参量振荡器等方面的研究。

Email: zhangzhaowei@hust.edu.cn

0 引言

激光面世以来,激光技术的一个研究方向是提高激光的功率、能量以及光束质量,并且取得了一系列的进展。近年来,随着非线性光学研究的深入,以及新型激光材料的不断涌现、发展以及成熟,激光的工作特性也更为丰富,也催生了更为广泛的激光应用,随之而来则是更为细化的应用需求。在这之中,激光的工作波长在许多激光应用中显得尤为重要。不同的激光应用往往会由于不同的激光波段而产生截然不同的效应。其中,中红外波段由于自身独特的性质,在包括国防安全、医疗、工业、食品以及环境监测等在内的众多领域有着广泛的应用前景^[1-5]。因此,开展中红外波段激光的研究有重要的意义,既是激光技术研究的延续和发展,也有大量的现实应用需求。

中红外波段对应的波长范围为 2~20 μm^[6],对应的光子能量恰好与分子的本征振动跃迁过程所需的能量重合,因而中红外波段又被称为分子的光谱学指纹区。中红外激光是当今国际公认的前沿研究方向。通过简单地测量某种分子在中红外波段的吸收谱,即可确定出该分子的种类和结构,这一性质也是众多中红外应用的基础。此外,中红外光源的光谱宽度也是相当重要的一项指标,特别是对于包括傅里叶变换红外光谱学 (FTIR) 以及 micro-FTIR、nano-FTIR 在内的众多应用^[7-10],所采用的中红外光源的光谱宽度直接决定了其实际的工作效率与应用范围。因而,对宽谱中红外激光光源的研究有着非常急迫的需求。

受限于传统激光增益介质和材料的限制,早期的宽谱中红外光源主要是黑体辐射的热光源和同步辐射光源这两类。基于黑体辐射的热光源是一种广泛使用的中红外光源,其结构简单,输出光谱范围广,也是 FTIR 的标准光源^[11]。但是作为非相干光源,其光谱亮度极低,测量应用中所能获得的信噪比较低,在有限的测量时间内的检测灵敏度也偏低。而同步辐射光源则可以产生相干性良好的中红外宽谱辐射,其光谱亮度通常要比黑体辐射光源高两到三个数量级,是一种高性能的宽谱中红外相干光源^[12]。但是同步辐射光源体积庞大、建设和使用成本高、无法移动,只能应用于部分科学研究。因此,两者都无法满足更广泛、更高效的中红外应用需求。近年来,小型化

的、低成本的宽谱中红外相干光源逐渐成为了国际激光领域的研究热点之一,包括中红外锁模激光器、差频产生、超连续谱产生、量子级联频率梳等一系列新型中红外激光设备^[13-19]。

在现有的新型宽谱中红外激光设备中,同步泵浦光学参量振荡器 (SPOPO) 具有低成本、结构紧凑、高光谱亮度等一系列优点,并且其实用性也已经得到了充分地验证^[20-22]。但是受限于自身的工作机制,SPOPO 的光谱输出带宽非常依赖于所用泵浦激光系统的相关性能指标,这限制了 SPOPO 输出光谱带宽的进一步的发展。

文中针对 SPOPO 的这一问题的,提出并论述了将传统 SPOPO 构建为以啁啾脉冲形式运转的啁啾脉冲 OPO(CPOPO) 的工作模式。在该模式下,SPOPO 的输出光谱带宽能够得到极大地改善,其对泵浦源的依赖性也得以极大地降低。最后通过实验验证,实现了基于 CPOPO 的宽谱中红外激光产生。

1 SPOPO 的工作特性与限制机理

与传统的基于粒子数反转的激光器不同,由于同步泵浦的工作特性,SPOPO 的时间输出特性更依赖于泵浦源。对于振荡器而言,阈值泵浦功率是其最基本的性质。在连续波的单谐振 OPO 中,阈值泵浦光强可以表示为^[23]:

$$I_{\text{threshold}} = \frac{n_p n_s n_i \epsilon_0 c^3 L^2}{2\omega_s \omega_i d_{\text{eff}}^2} \left(\frac{1-R}{R} \right) \quad (1)$$

式中: n 为折射率; ω 为角频率;下标 p, s, i 分别代表泵浦、信号及闲频光; R 为谐振腔的等效反射率。对于 SPOPO 来说,如果假设谐振腔在振荡信号波段的净色散接近于零,且非线性晶体的长度相对较短时(即脉冲间的走离效应可以忽略不计),那么这一基于连续波 OPO 计算得到的结果将同样适用于 SPOPO 的阈值计算。尽管如此,与连续波泵浦不同,对于超短激光脉冲,其瞬时泵浦功率或者瞬时泵浦光强是随时间变化的函数。即使在单个脉冲包络内,不同时间处的瞬时泵浦功率差异也很大。如图 1 所示,SPOPO 的振荡阈值可以近似表示为一条与时间无关的直线,即红色虚线。根据简单的谐振关系可以推断,黑色实线表示的泵浦脉冲中只有高于振荡阈值的这部分能量才能够有效地转换到振荡脉冲,从而实现振荡。这

一点既是 SPOPO 能够实现超短脉冲振荡的原因,也意味着谐振腔内振荡的脉冲宽度实际上会受到泵浦脉冲的影响。

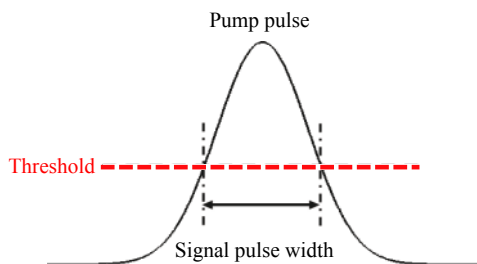


图 1 SPOPO 中泵浦脉冲对信号脉冲宽度的影响

Fig.1 Effect of pump signal on signal pulse width in SPOPO

根据图 1 以及振荡器的相关性质,可以得到一个简单的关系:

$$\tau_{\text{signal}} \propto N \times I_{\text{threshold}} \quad (2)$$

式中: τ_{signal} 为信号脉冲宽度; N 为泵浦光强对应 OPO 振荡阈值的倍数 ($N \geq 1$)。公式 (2) 表明,对于固定的 SPOPO 谐振腔参数,泵浦功率越高,振荡信号脉冲宽度也越大;而当 SPOPO 工作在阈值时,其能够实现最短时间宽度的脉冲输出。1990 年,美国加利福尼亚大学的 E. C. Cheung 等人通过数值计算总结得到了单谐振 SPOPO 工作在阈值功率下的振荡脉冲宽度大约为^[24]:

$$\tau_{\text{signal}} \approx 0.4\tau_{\text{pump}} \quad (3)$$

这一结果表明, SPOPO 振荡脉冲的最短宽度与泵浦脉冲宽度直接相关。而对于给定形状的无啁啾脉冲,其频域光谱宽度与时域脉冲宽度的乘积为一常数,这也就意味对于无啁啾振荡脉冲,其最宽的光谱带宽同样受到了泵浦脉冲宽度的限制。为了更直观地展示 SPOPO 的光谱输出特性,以典型的基于周期极化铌酸锂 (PPLN) 晶体的 SPOPO 为例,笔者所在课题组计算了在不同泵浦脉冲宽度下,该 SPOPO 工作在阈值时的输出脉冲宽度和不同泵浦阈值倍数时的光谱带宽。如图 2 所示(为了尽可能减小走离效应的影响,计算中 PPLN 的长度仅为 0.5 mm)。在图 2(a)中可以看到,随着泵浦脉冲宽度的增加, SPOPO 阈值处的信号脉冲宽度也不断增加,而对应的输出光谱带宽则呈现出不断减少的趋势,即 SPOPO 的输出信号光谱带宽与泵浦脉冲宽度呈负相关。而在实际的 SPOPO 实验中,为了提高功率转换效率或者信号的

输出功率,泵浦功率往往会超出阈值数倍。此时,信号脉冲宽度会不断增长,对应其光谱带宽也会不断减小,如图 2(b) 所示。最终,信号脉冲宽度往往和泵浦脉冲宽度相近,因而 SPOPO 的输出光谱带宽也与泵浦脉冲本身光谱带宽相近^[25-27]。

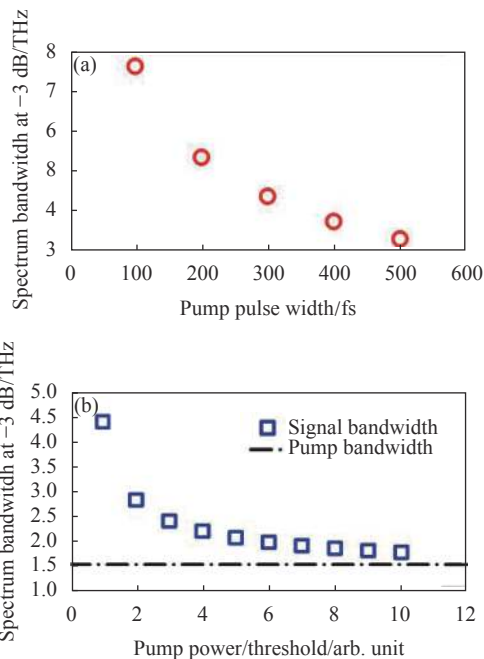


图 2 (a) 泵浦脉冲宽度(在阈值泵浦条件下)和 (b) 泵浦功率(泵浦脉冲宽度为 300 fs 时)对 SPOPO 信号脉冲光谱带宽的影响

Fig.2 Effect of (a) pump pulse width (when pumped at around threshold) and (b) pump power (when the pump pulse width is fixed at 300 fs) on signal spectrum bandwidth in SPOPOs

对于非线性频率变换技术,其可输出光谱范围与晶体的相位匹配特性相关。对于 SPOPO,其可输出光谱带宽不仅受到相位匹配带宽限制,还进一步受到同步泵浦的工作机制的限制。对于前者,目前已经有相当多成熟的方案能够实现相位匹配带宽的拓展^[28-30],甚至通过简单地缩短非线性晶体的长度也能够实现数百纳米的增益带宽^[31]。因此,通过 SPOPO 输出覆盖整个相位匹配带宽的宽谱脉冲,实际上也对泵浦源的脉冲宽度提出了极高的要求。为了进一步说明这一情况,文中计算了不同长度 PPLN 晶体的相位匹配效率曲线的 -3 dB 带宽以及其所对应的无啁啾脉冲所需的最长泵浦脉冲宽度,如图 3 所示。

当 PPLN 晶体的长度小于 1 mm 时,其相位匹配带宽也达到了 10 THz 以上,对应所需的泵浦脉冲宽

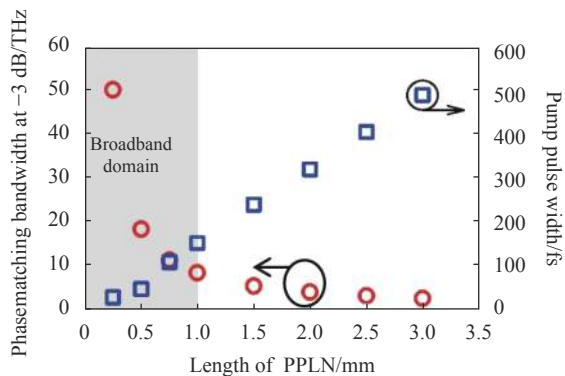


图 3 不同长度 PPLN 晶体对应的相位匹配带宽及所需泵浦脉宽
Fig.3 Phase-matching bandwidth and the corresponding pump pulse width of different PPLN lengths

度小于 100 fs。这一条件对于基于掺钛蓝宝石以外的脉冲激光系统来说,都是相对苛刻的,特别是对于 2 μm 及以上的激光波长。此外,阈值附近的工作模式不利于泵浦能量的有效利用,而进一步增加泵浦功率或者降低阈值将会造成信号脉冲的进一步展宽,因而需要采用更短的泵浦脉冲(维持振荡信号脉冲宽度不变的情况下)。两者相互制约,难以实现有效的宽谱信号脉冲振荡。因此,传统 SPOPO 的这种运转模式难以直接有效地利用非线性晶体的相位匹配带宽,只有对其中脉冲运转机制进行合理的改造,才能从根本上解放 SPOPO 的光谱输出性能,使其更好地满足相关应用的需求。

2 啁啾脉冲光参量振荡器

啁啾脉冲是指不同频率分量在时间轴上的分布不同,从而导致其瞬时频率沿时间轴发生明显变化的脉冲^[32]。相对于无啁啾脉冲,它是一种无序、熵增的状态,会导致脉冲宽度的展宽,常常是超快激光产生中需要解决的问题。

但是对于 SPOPO,啁啾所导致的脉冲展宽能够有效地、直接地解决由泵浦脉冲宽度所导致的最短运转脉冲宽度对输出信号或闲频光谱带宽的限制。为了更直接地阐释这一论点,笔者假设信号脉冲为高斯脉冲,且具有线性啁啾 C ,可表示为^[32]:

$$A(t) = \exp\left[-\frac{(1 + i \times C)t^2}{2T_0^2}\right] \quad (4)$$

首先,假设输出信号脉冲的光谱带宽一定,与非线性晶体的相位匹配带宽吻合,分别计算其不同啁啾

下的脉冲宽度。以长度为 0.5 mm 的 PPLN 晶体为例,其相位匹配 -3 dB 带宽约为 18 THz。如图 4(a) 所示,当信号脉冲的啁啾 C 为 0 时,其脉冲宽度最短,仅为 25 fs,对应所需的泵浦脉冲宽度也最短;而随着信号脉冲啁啾的不断增大,其脉冲宽度也不断增加,达到了 250 fs,即啁啾脉冲能够在维持宽谱输出性能的同时,极大地降低 SPOPO 对泵浦脉冲宽度的指标要求。同样地,如图 4(b) 所示,在固定的脉冲宽度下,更强的啁啾能够实现更宽的光谱输出。啁啾脉冲的这一特性,从逻辑上显然可以有效地解决 SPOPO 对于泵浦脉冲宽度的依赖。因此,实现 SPOPO 中的啁啾脉冲振荡(即 CPOPO),也就能够实现宽谱激光脉冲的输出。

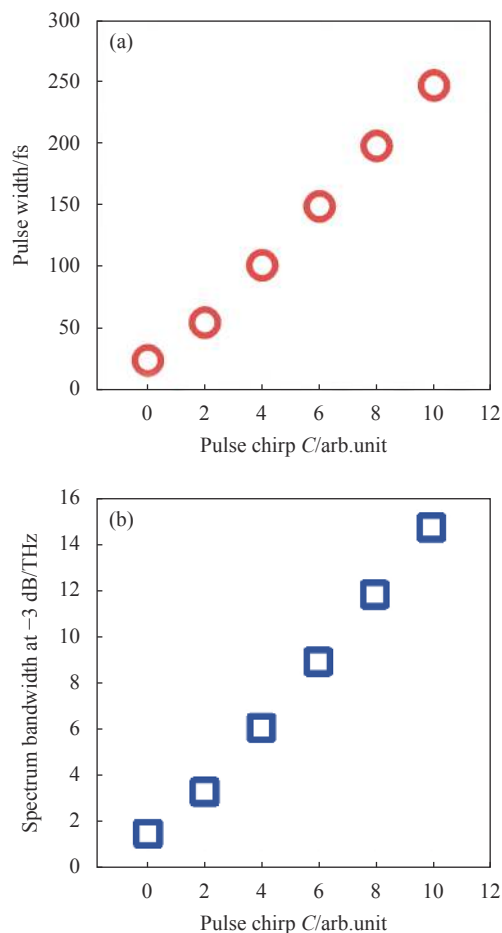


图 4 (a) 相同光谱带宽下不同啁啾 C 高斯脉冲的脉冲宽度, (b) 相同脉冲宽度下不同啁啾 C 高斯脉冲的光谱带宽 (脉冲宽度为 300 fs)
Fig.4 (a) Pulse width of Gaussian pulse with the same spectrum but different chirp C , (b) Spectrum bandwidth of Gaussian pulse with the same pulse bandwidth but different chirp C (the pulse width is 300 fs)

实际上,啁啾脉冲振荡器(CPO)的概念早在20世纪90年就已经被提出,并主要应用于掺钛蓝宝石激光振荡器中的高能脉冲产生和直接输出^[33-35]。CPO的主要思想是通过增加或调控腔内净色散值,实现更宽的振荡脉冲宽度,从而可以在保持峰值功率不变的情况下进一步提高脉冲能量,这与著名的啁啾脉冲放大(CPA)技术^[36]如出一辙。尽管SPOPO在很多方面与传统脉冲激光器具有相似的性质,但也有着许多截然不同的特性。因此,将CPO的概念推广和应用到SPOPO中,实现CPOPO的运转,实际上也与传统的CPO有着明显的区别。

经过理论与实验研究,笔者所在课题组近年来实现了两类CPOPO的运转方式,分别基于自相位调制效应(SPM)和啁啾准相位匹配(CQPM)机制^[37-39]。

2.1 基于 SPM 的 CPOPO

在传统的CPO中,实现啁啾脉冲振荡或者增强脉冲啁啾的方式主要是依赖于增加腔内净色散。但考虑到SPOPO中的时间增益窗口特性,色散也可能导致远离中心频率的频率成分难以实现与泵浦脉冲的同步,因此反而可能会限制CPOPO的输出光谱带宽。而SPM由于能够在不展宽脉冲的条件下实现脉冲本身啁啾的增长,在原理上显得更为契合,能够满足CPOPO产生宽谱啁啾脉冲的需求。

为了尽可能让非线性晶体的相位匹配带宽不至于限制仿真中信号的光谱带宽,这里同样以基于0.5 mm长PPLN晶体的SPOPO为例,分别计算谐振腔在不同群时延色散(GDD)以及SPM效应下时的振荡信号脉冲的啁啾与光谱带宽情况。

由于SPOPO中的脉冲一般没有固定的脉冲形状,因此脉冲的啁啾无法采用类似高斯脉冲的啁啾参数C来进行直接衡量。为了能够适应更普遍的脉冲形状,更公平、准确地评价脉冲的啁啾,这里定义一个相对啁啾参数 C_r :

$$C_r = \frac{\Delta T_{RMS}(S_{pulse})}{\Delta T_{RMS}(S_{TL})} \quad (5)$$

式中: ΔT_{RMS} 为均方根脉冲宽度; S_{pulse} 为脉冲的强度包络; S_{TL} 代表脉冲对应的转换极限脉冲的强度包络。

图5(a)展示了不同腔内色散下的振荡脉冲特性。可以看到,随着色散的不断增长,脉冲宽度和啁啾都呈现出一定的增长趋势,但是后者增长的程度远

远落后于前者。这说明,在SPOPO中,色散对信号脉宽的影响远远大于脉冲的啁啾,其本质上可理解为大量的光谱成分由于色散导致的走离难以实现与泵浦脉冲的同步,因此也难以获得增益实现振荡。所以,如图5(c)所示,此时脉冲的光谱带宽呈现出明显的下降趋势。

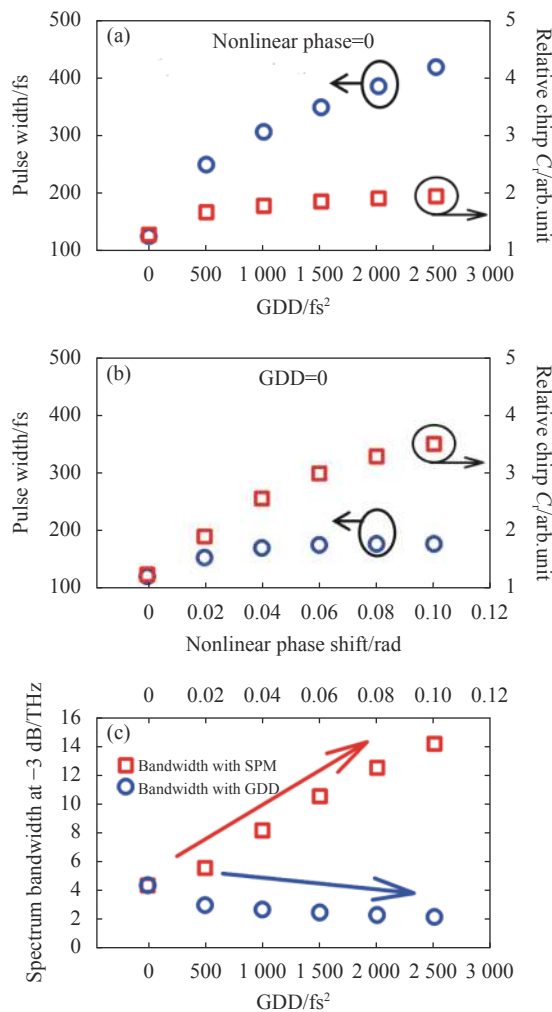


图5 模拟信号脉冲宽度与啁啾随(a)腔内单程GDD和(b)腔内单程非线性相移的变化,(c)输出光谱宽度随腔内单程GDD和腔内单程非线性相移的变化(泵浦脉冲宽度为300 fs)

Fig.5 Simulated signal pulse width and chirp versus (a) intracavity single GDD and (b) intracavity single nonlinear phase shift, (c) output spectrum bandwidth versus intracavity single GDD and nonlinear phase shift (while the pump pulse width was 300 fs)

而对应的SPM效应,情况则恰好相反。如图5(b)所示,脉冲啁啾的增长超过了脉冲宽度扩展,因而更多的光谱成分能够在泵浦的窗口内获得增益。从而在图5(c)中,脉冲的光谱带宽表现出明显的增长。数

值计算的结果与逻辑的推演相符,要实现宽谱输出的 CPOPO,振荡的啁啾脉冲需要工作在更小的色散下。因此其啁啾的来源主要是 SPM 效应,即基于 SPM 效应的 CPOPO。

基于以上的数值计算,具体的实验装置布局如图 6 所示。工作方案基于 SPOPO 典型的 X 型振荡器结构,整个谐振腔均采用以 YAG 作为基材的介质镜作为腔镜,共包括四个凹面反射镜 M1、M2、M3 和 M4 (曲率半径均为 75 mm) 以及一个平面反射镜 M5 和一个输出耦合镜 OC。除 OC 外,其余镜片均在泵浦和闲频波长范围具有极高的透射率 ($T > 90\%$),在信号波长范围则具有极高的反射率 ($R > 99.8\%$)。OC 在信号波段的输出耦合比约为 0.5%。为了尽可能获取更大的相位匹配带宽,笔者同样选用了一块长度仅为 0.5 mm 的 PPLN 晶体,极化周期为 29.98 μm 。

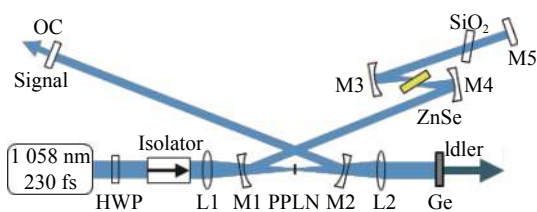


图 6 基于 SPM 效应的 CPOPO 装置图

Fig.6 Experiment configuration of CPOPO based on SPM effect

实际上, SPOPO 中关于 SPM 效应所导致的光谱展宽已经有过一些报道^[40-41]。但其 SPM 效应往往是作为附加效应,与非线性增益都是由同一块二阶非线性晶体所提供,因此难以实现腔内 SPM 的单独调控。此外,对于 PPLN 这类晶体,其二阶非线性系数相对较高,非线性折射率相对较低,难以实现有效的非线性相移^[42]。因此,为了增强和调控腔内的 SPM 效应以实现 CPOPO 的运转,笔者在谐振腔的一臂中加入了一块厚度为 1 mm 的多晶 ZnSe (未镀膜) 薄片。其非线性折射率 $n_2 = 3 \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$ ^[43],约为 PPLN 晶体的 10 倍,能够提供足够的 SPM 效应来实现光谱展宽和脉冲啁啾。此外,笔者还在其中一臂中放置了熔融石英窗口片 (SiO_2),通过改变其厚度可以实现对腔内净色散的有效调控。

首先,将 ZnSe 薄片放置在 M3 和 M4 之间的焦点位置,以最大泵浦功率 (约为 3.3 W) 运转,同时监测不同色散参数 (即更换不同厚度的 FS 窗口片) 下的输出

信号光谱。当 FS 窗口片的厚度为 7 mm (此时腔内净二阶色散约为 156 fs^2) 时,该 OPO 的输出信号光谱达到最大宽度,其在 -30 dB 的带宽约为 29 THz,覆盖了 1 420~1 650 nm,如图 7(a) 所示。其对应的干涉自相关数据显示其脉冲宽度为 115 fs,约为该光谱对应无啁啾脉冲宽度的 3.1 倍。

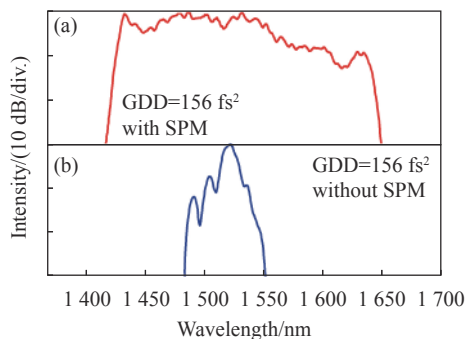


图 7 (a) 有 SPM 效应时和 (b) 无 SPM 效应时的输出信号光谱

Fig.7 Output signal spectrum (a) with SPM and (b) without SPM

作为对比,笔者将 ZnSe 薄片放置在远离焦点的位置,由于 ZnSe 薄片上光斑尺寸太大,此时 OPO 中的 SPM 效应并没有得到增强。在同样 156 fs^2 的腔内净色散下,测量得到了其输出信号光谱如图 7(b) 所示。此时,其输出信号脉冲 -20 dB 带宽仅为 7.9 THz,与泵浦源的光谱带宽非常接近 (约为 6.7 THz)。测量得到的脉冲宽度为 187 fs,约为其对应无啁啾脉冲宽度的 1.3 倍,呈现出弱啁啾的状态,与图 5 中的仿真结果非常吻合。这一实验结果再一次表明,在传统 OPO 中引入足够的 SPM 效应是实现 CPOPO 运转输出宽谱啁啾脉冲的关键因素。

图 8(a) 中总结了不同腔内净色散下,该 CPOPO 的输出信号脉冲光谱带宽的实验测量结果 (蓝色方块) 以及对应参数的数值计算结果 (红色圆圈)。实验和理论结果都呈现出一致的规律,即较小的正色散值有助于增加振荡信号的光谱宽度,这也与传统锁模激光器中的脉冲演化极其相似^[33]。但如果进一步减小腔内色散 (小于 156 fs^2 时),在实验中可以观察到明显的光谱分裂,这可能与谐振腔内残余高阶色散密切相关。

为了研究泵浦功率对振荡信号的影响,将腔内净二阶色散固定为最佳色散,即 156 fs^2 ,再进一步改变输入的泵浦功率。如图 8(b) 所示,实验和仿真结果都表明:更高的泵浦功率将更有利于 CPOPO 中的光谱

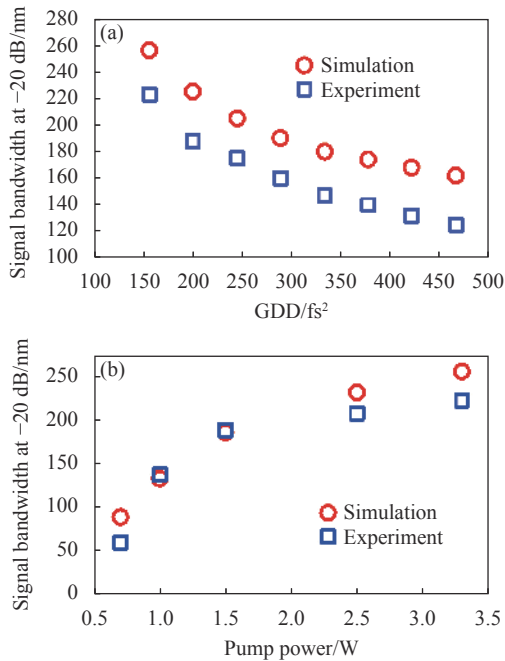


图 8 不同 (a) 腔内 GDD 和 (b) 泵浦功率条件下的信号光带宽

Fig.8 Signal light bandwidth v.s. (a) different intracavity GDD and (b) different pump power

展宽,这也与 SPM 本身的性质相符。此外,随着泵浦功率不断增加,光谱呈现出不断放缓的趋势,这意味着在相同色散参数下,CPOPO 的输出光谱带宽存在一定的上限。

其次,笔者也测量了该 CPOPO 输出的闲频光谱。在非线性频率变换中,每个湮灭的泵浦光子将会分别产生一个信号光子和一个闲频光子。因此,泵浦光谱可以表示为信号和闲频光谱的卷积^[44],而当信号光谱带宽远大于泵浦时,闲频光谱将呈现出与信号光相仿的光谱带宽。如图 9 所示,在输出信号光谱最宽的配置下,测量得到了光谱带宽最宽的闲频光,其-30 dB 带宽高达 30 THz 左右,覆盖了约 2.9~4.1 μm (蓝色实线),与信号光约 29 THz 的带宽非常接近,这也与该 PPLN 晶体的相位匹配带宽 (红色虚线) 极其吻合,这也证明了该 CPOPO 能够实现对非线性晶体增益带宽的有效利用。

该 CPOPO 输出功率与泵浦功率的关系如图 10 所示。在 OC 的输出耦合比为 0.5% 的条件下,该 CPOPO 的工作阈值约为 700 mW,OC 后测得的最大信号输出功率约为 25 mW,Ge 窗后测得的最大闲频输出功率约为 92 mW。而实际上,根据 Manly-Rowe 关系,频率变换过程中产生的信号功率应该接近闲频

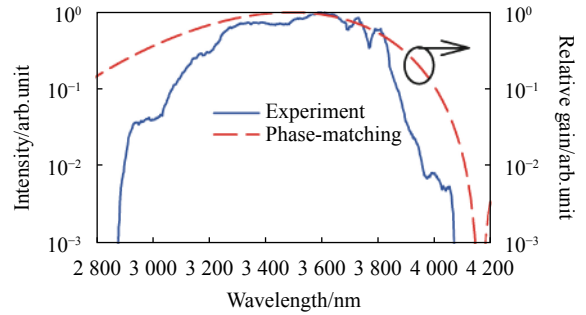


图 9 输出闲频光谱与相位匹配曲线图

Fig.9 Output idler spectrum and phase-matching curves

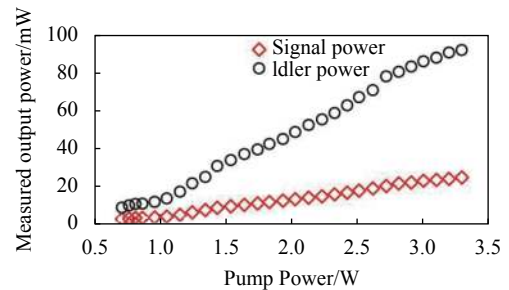


图 10 CPOPO 输出功率与泵浦功率的关系

Fig.10 Output power of CPOPO v.s. pump power

光的 2 倍,应该远高于 OC 之后的实际测量值。在实验操作中,由于 ZnSe 和 FS 窗口片表面反射的存在,导致了一定信号功率的泄漏,这可能是测量信号功率远低于闲频光功率的主要原因。尽管如此,笔者测量得到的输出信号和闲频光功率与泵浦功率仍然呈现出比较显著的线性关系。此外,值得注意的是,当泵浦功率即使增加到接近阈值泵浦功率 5 倍时,转换效率也没有出现明显的下降,即没有出现明显的反向转换,这也说明该 CPOPO 的输出功率还具有进一步提升的潜力。

2.2 基于 CQPM 的 CPOPO

相比于传统的激光振荡器,SPOPO 在增益方面的特性使得色散与 SPM 并非脉冲啁啾产生的唯二因素。对于采用 CQPM 晶体的非线性频率变化过程,由于 CQPM 晶体本身相位匹配波长与晶体位置相关的特性以及信号脉冲与泵浦脉冲之间的走离效应,使得 CQPM 晶体本身的啁啾特性能够一定程度上转移至信号或闲频脉冲。

这一现象在 1997 年由 M. A. Arbore 等人首次提出,并在随后的倍频实验中通过抵消 CQPM 晶体的啁啾与泵浦脉冲啁啾实现了超短信号脉冲的输

出^[45-46]。2000 年, T. Beddard 等人进一步将该现象拓展到 SPOPO 中, 通过管理泵浦脉冲的啁啾以匹配 CQPM 晶体的啁啾, 最终实现了长脉冲泵浦下的超短脉冲输出^[47]。该方案虽然使得 SPOPO 的输出特性不再单纯地依赖于泵浦脉冲的宽度, 但是对泵浦脉冲的光谱宽度以及啁啾管控提出了很高的要求, SPOPO 输出的光谱带宽实际仍然与泵浦脉冲光谱带宽一致, 因此仍然难以满足 SPOPO 直接的宽谱输出要求。

实际上, 既然 CQPM 晶体的啁啾能够通过泵浦脉冲转移至其他脉冲, 那么当泵浦脉冲不具备啁啾或者啁啾较小时, 就能通过 CQPM 晶体的啁啾直接地产生啁啾脉冲, 从而通过合理地配置, 就有可能实现啁啾脉冲的振荡, 继而实现 CPOPO 的运转。以啁啾 PPLN(CPPLN) 晶体为例, 假设该晶体的反转周期呈线性递减, 即信号光的相位匹配波长呈线性递减。图 11(a) 和 (b) 分别描述了其中啁啾信号脉冲的形成和放大过程。如图 11(a) 所示, 当泵浦脉冲进入晶体时, 波长最长的信号分量将在晶体的最前端实现相位匹配, 而其他波长较短的信号分量则将会随着泵浦脉冲经过晶体不同位置按波长的长短依次产生。此外, 由于在 CPPLN 晶体中, 信号与泵浦光的群速度存在差异, 较早产生的长波信号分量将会随着传播距离的增加不断地远离泵浦脉冲, 而短波信号分量由于产生位置相对靠后, 其相对于泵浦脉冲的走离效应也较弱, 因此泵浦脉冲经过 CPPLN 晶体所形成的信号脉冲, 其长波分量和短波分量将会由于走离效应和增益与位置相关的特性在时间上分离, 形成明显的啁啾脉冲, 如图 11(a) 所示。而当谐振腔的参数能够有效地维持该啁啾脉冲的振荡, 形成自再现, 如图 11(b) 所示, 那么就能基于 CPPLN 晶体实现 CPOPO 的运转,

获得覆盖晶体相位匹配带宽的宽谱啁啾脉冲输出。

通过数值计算可以直接地验证和研究以上的假设和推论。为了保持足够的增益和带宽, 仿真中 CPPLN 的长度设置为 2 mm。在计算中, 笔者发现, 通过缩小腔内净色散能够有效地实现基于 CPPLN 晶体的 CPOPO 运转。当晶体的极化周期变化斜率为 $2 \times 10^7 \text{ m}^{-2}$ 时, 稳定输出信号脉冲的时频图如图 12 所示。此时脉冲宽度为 344 fs, 约为其对应转换极限脉冲宽度的 13 倍, 因此该脉冲呈现出明显的啁啾特性: 长波分量位于脉冲前沿, 短波分量位于脉冲后沿, 并且表现出近线性的分布, 这与 CPPLN 晶体的啁啾特性相符。这一特性表明, 应用 CPPLN 晶体能够在 SPOPO 中形成啁啾脉冲, 实现 CPOPO 模式的运转。此外, 信号脉冲的光谱范围覆盖了 1.35~1.60 μm , 与 CPPLN 的周期范围 25.8~30.9 μm 所对应的相位匹配波长完全吻合, 这也充分说明了该模式能够有效地实现非线性晶体相位匹配带宽内的宽谱脉冲输出。

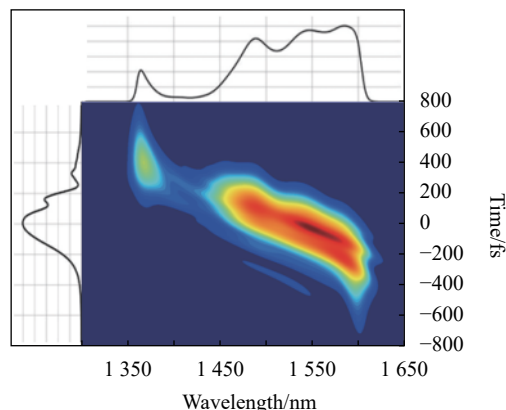


图 12 基于 CPPLN 的 CPOPO 仿真所获得的信号光时频图

Fig.12 Simulated time-wavelength representation of the generated signal wave in CPOPO with CPPLN

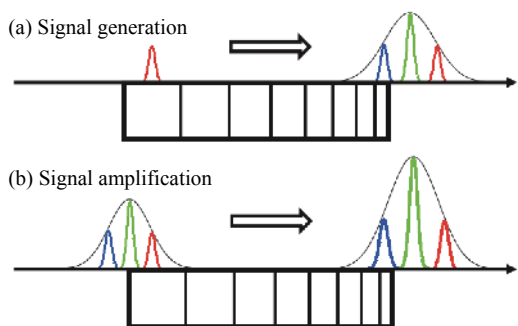


图 11 CPPLN 中啁啾脉冲的形成和放大过程^[39]

Fig.11 Generation and amplification of chirped pulses in CPPLN^[39]

此外, 通过调整 CPPLN 晶体的啁啾能够直接地调控振荡信号脉冲的啁啾。如图 13 所示, 在保持其他参数不变的情况下, 笔者计算得到了不同啁啾斜率 CPPLN 对应的信号脉冲的相对啁啾 C_r 和光谱带宽。可以看到, 输出信号脉冲的相对啁啾和光谱带宽与 CPPLN 晶体的啁啾斜率呈正相关, 即 CPPLN 晶体的啁啾斜率越大, 信号脉冲的啁啾也越大, 对应的光谱带宽越宽。这样既提供了一种 OPO 中输出光谱带宽调节的简单方法, 也进一步佐证了 CQPM 晶体的啁啾特性对振荡脉冲啁啾的直接影响。

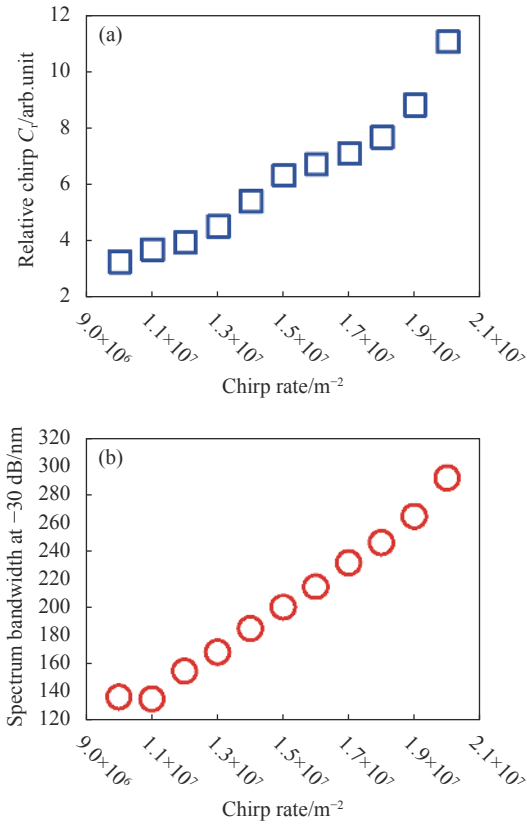


图 13 数值仿真: 基于不同啁啾率的线性啁啾 PPLN 晶体的 CPOPO 所获得信号光的 (a) 啁啾及 (b) 光谱带宽

Fig.13 Number simulation: (a) Chirp and (b) spectral bandwidth of the signal waves generated from the CPOPO based on linearly-chirped PPLN crystals with different chirp rates

根据以上的实验结果, 可以比较容易地构建出基于 CPPLN 晶体的 CPOPO 的实验配置, 具体装置如图 14 所示。该 OPO 的谐振腔同样采用了常见的 X 形结构, 其中 M1 和 M2 为凹面镜 (曲率半径为 75 mm), M3、M4 以及 M5 为平面反射镜, 也均为以 YAG 玻璃为基材的介质镜, 其在 1030~1060 nm 和 3.0~5.0 μm 波段的透过率大于 90%, 在 1.35~1.6 μm 波段的反射率大于 99.8%。输出耦合镜的输出耦合比约为 1.5%。除了透过率及反射率特性, 以上这些介质镜在信号光波段 (1.35~1.6 μm) 的色散曲线都做了尽可能地优化, 其 GDD 的绝对值都小于 80 fs²。泵浦源的脉冲宽度约为 230 fs, 重复频率约为 90 MHz。

CPPLN 晶体的总长度为 2 mm, 是根据仿真参数自行设计的线性啁啾 CQPM 晶体, 其极化周期从 30.856 μm 线性减小到 25.805 μm, 对应的啁啾斜率为 2×10⁷ m⁻²。

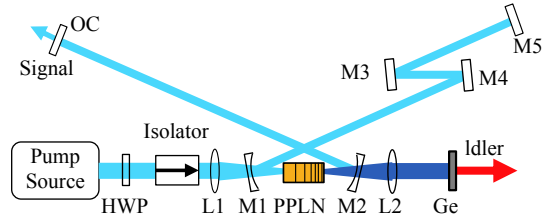


图 14 基于 CPPLN 的 CPOPO 装置图

Fig.14 Experiment configuration of CPOPO based on CPPLN

在实验的初始阶段, 笔者同样按照泵浦激光系统的最大功率 (约 3.0 W) 进行运转, 并同时测量对应的输出信号光谱。通过改变 OPO 腔内平面反射介质镜的数量, 对腔内净色散进行了优化, 获得了最宽光谱带宽的输出信号脉冲, 此时的腔内净二阶色散仍然大于零。图 15(a) 中的蓝色实线展示了该配置下测量得到的信号光谱, 覆盖了 1293~1734 nm 的光谱范围, 其 -30 dB 带宽则是高达 69.0 THz。

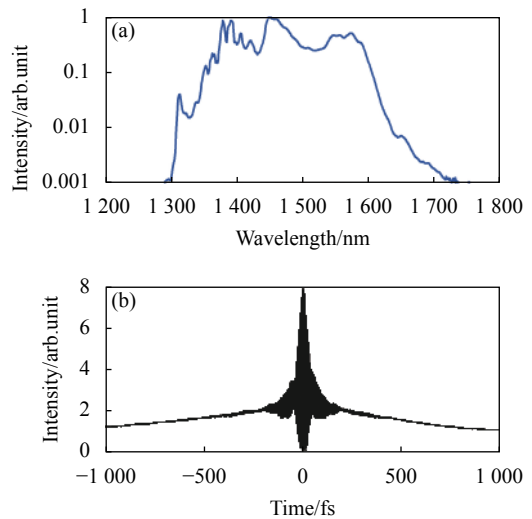


图 15 测得的输出信号 (a) 光谱图与 (b) 干涉自相关图

Fig.15 Schematic of measured output signal (a) spectrum and (b) interferometric autocorrelation

进一步地验证其脉冲特性, 该输出脉冲的干涉自相关曲线, 如图 15(b) 所示。测量结果显示, 该脉冲信号的半高全宽约为 290 fs (假设该脉冲为高斯脉冲)。而泵浦中心频率 (假定波长为 1058 nm) 与信号中心频率 (假定波长为 1500 nm) 在 2 mm 长的 CPPLN 晶体中的走离时间约为 200 fs, 这与测量得到的信号脉冲宽度十分接近, 也从另一方面佐证了上述 CPPLN 晶体中的啁啾脉冲形成机制。除此之外, 干涉自相关图隆起的两翼也说明输出信号脉冲具有明显的啁

啾。通过计算可得,该脉冲相对啾啾参数 C_r 约为 13.8,这也意味着其时间带宽积约为其光谱对应无啾啾脉冲的 13.8 倍,这一数据表明:利用该机制能够实现啾啾脉冲的振荡,并且能够实现比较高的啾啾水平。

图 16 展示了采用光栅式光谱仪测量得到的闲频光谱图(蓝色实线)。可以看到,此时输出闲频光的瞬时光谱覆盖了 2890~5025 nm,其 -30 dB 带宽高达 44.1 THz。

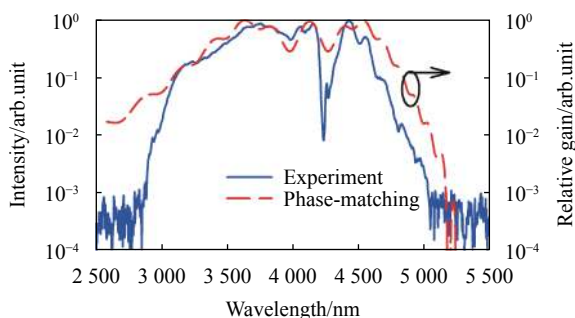


图 16 测得的输出闲频光谱(实线)与计算的相位匹配曲线(虚线)

Fig.16 Measured output idler spectrum (solid line) and computed phase-matching curves (dash line)

该输出光谱与该 CPPLN 晶体的相位匹配曲线(红色虚线)基本吻合,这说明了这种啾啾脉冲的形成机制能够产生仅受 CQPM 晶体增益带宽限制的宽谱啾啾脉冲。测量得到的光谱曲线在 4200 nm 附近呈现出的明显缺陷主要来源于实验室空气中 CO_2 分子的吸收^[48]。在泵浦波长为 1058 nm 且信号波覆盖 1293~1734 nm 的情况下,按照频率转换的一一对应关系,闲频光谱理论上应该覆盖 2714~5821 nm,超过一个倍频程。导致带宽相对减少的原因可能是泵浦脉冲仍然具有一定的光谱宽度(约 7 THz)以及介质镜对于 5 μm 以上波长可能存在的吸收。

3 结 论

文中探讨了 SPOPO 中输出光谱带宽的限制因素,介绍了一种新颖的、能够实现宽谱脉冲输出的运转模式,即 CPOPO,以及基于不同物理机制的 CPOPO 工作方案。在基于 SPM 的 CPOPO 方案中,通过数值计算总结归纳了色散和 SPM 效应对于脉冲啾啾和光谱带宽的影响规律,并通过实验进行了验证。在相应的仿真指导下,通过优化相关参数,获得了光谱带宽

约 30 THz,覆盖 2.9~4.1 μm ,功率高达 92 mW 的中红外宽谱脉冲输出。在基于 CQPM 晶体的 CPOPO 方案中,以 CPPLN 晶体为例,从理论上描述了其中啾啾脉冲形成和振荡的机理,并通过数值仿真进行了验证,得到了脉冲啾啾和光谱带宽与 CPPLN 晶体啾啾之间的变化规律。在具体的实验中,通过优化色散实现了光谱带宽约 44 THz,覆盖 2.9~5.0 μm ,功率高达 64 mW 的中红外宽谱激光输出。以上两个方案的输出光谱带宽都远远超过了泵浦脉冲宽度所对应的光谱带宽,充分实现了对非线性晶体相位匹配带宽的有效利用。基于以上方案,实现了基于 SRO 输出的宽谱的中红外激光输出,覆盖了整个 3~5 μm 的大气红外窗口。

参 考 文 献:

- [1] Waynant R W, Ilev I K, Gannot I. Mid-infrared laser applications in medicine and biology [J]. *Phil Trans R Soc Lond A*, 2001, 359: 635-644.
- [2] Griffith D W T, Pohler D, Schmitt D, et al. Long open-path measurements of greenhouse gases in air using near-infrared Fourier transform spectroscopy [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2018, 11: 1549-1563.
- [3] Downey G. Food and food ingredient authentication by mid-infrared spectroscopy and chemometrics [J]. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 1998, 17(7): 418-424.
- [4] Seddon A B. Mid-infrared photonics for early cancer diagnosis[C]//16th International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON), Graz, 2014: 1-4
- [5] Zhong Ming, Ren Gang. 3~5 μm mid-infrared laser countermeasure weapon system [J]. *Sichuan Ordnance Journal*, 2007, 28(1): 3-6. (in Chinese)
钟鸣,任刚. 3~5 μm 中红外激光对抗武器系统[J]. *四川兵工学报*, 2007, 28(1): 3-6.
- [6] Schliesser A, Picqué N, Hänsch T W. Mid-infrared frequency combs [J]. *Nature Photonics*, 2012, 6: 440-449.
- [7] Carr G L. Resolution limits for infrared microspectroscopy explored with synchrotron radiation [J]. *Rev Sci Instrum*, 2001, 72: 1613.
- [8] Brehm M, Schliesser A, Keilmann F. Spectroscopic near-field microscopy using frequency combs in the mid-infrared [J]. *Opt Express*, 2006, 14: 11222-11233.
- [9] Huth F, Govyadinov A, Amarie S, et al. Nano-FTIR absorption spectroscopy of molecular fingerprints at 20 nm spatial

- resolution [J]. *Nano Lett*, 2012, 12: 3973-3978.
- [10] Lu F, Jin M, Belkin M A. Tip-enhanced infrared nanospectroscopy via molecular expansion force detection [J]. *Nature Photon*, 2014, 8: 307-312.
- [11] Griffiths P R, de Haseth J A. Fourier transform infrared spectrometry[M]. New York: John Wiley & Sons Inc, 2007.
- [12] Petibois C, Deleris G, Piccinini M, et al. A bright future for synchrotron imaging [J]. *Nat Photonics*, 2009, 3: 179.
- [13] Ma J, Qin Z, Xie G, et al. Review of mid-infrared mode-locked laser sources in the 2.0 μm -3.5 μm spectral region [J]. *Applied Physics Reviews*, 2019, 6(2): 021317.
- [14] Luke K, Okawachi Y, Lamont M R E, et al. Broadband mid-infrared frequency comb generation in a Si₃N₄ microresonator [J]. *Opt Lett*, 2015, 40: 4823-4826.
- [15] Savchenkov A A, Ilchenko V S, Teodoro F D, et al. Generation of Kerr combs centered at 4.5 μm in crystalline microresonators pumped with quantum-cascade lasers [J]. *Opt Lett*, 2015, 40: 3468-3471.
- [16] Petersen C R, Møller U, Kubat I, et al. Mid-IR supercontinuum covering the molecular fingerprint region from 2 μm to 13 μm using ultra-high NA chalcogenide step-index fibre [J]. *Nat Photonics*, 2014, 8: 830.
- [17] Pupeza I, Sánchez D, Zhang J, et al. High-power sub-two-cycle mid-infrared pulses at 100 MHz repetition rate [J]. *Nature Photon*, 2015, 9: 721-724.
- [18] J. Zhang, K. Fritsch, Q. Wang, et al. Intra-pulse difference-frequency generation of mid-infrared (2.7-20 μm) by random quasi-phase-matching [J]. *Optics Letters*, 2019, 44: 2986.
- [19] Chen B, Wittmann E, Morimoto Y, et al. Octave-spanning single-cycle middle-infrared generation through optical parametric amplification in LiGaS₂ [J]. *Opt Express*, 2019, 27: 21306-21318.
- [20] Zhang Z, Gardiner T, Reid D T. Mid-infrared dual-comb spectroscopy with an optical parametric oscillator [J]. *Opt Lett*, 2013, 38: 3148-3150.
- [21] Maidment L, Zhang Z, Howle C R, et al. Stand-off identification of aerosols using mid-infrared backscattering Fourier-transform spectroscopy [J]. *Opt Lett*, 2016, 41: 2266-2269.
- [22] Maidment L, Schunemann P G, Reid D T. White powder identification using broadband coherent light in the molecular fingerprint region [J]. *Opt Express*, 2018, 26: 25364-25369.
- [23] Ebrahim-Zadeh M, Dunn M H. Optical Parametric Oscillators, Handbook of Optics[M]. New York, USA: McGraw-Hill, 2000.
- [24] Cheung E C, Liu J M. Theory of a synchronously pumped optical parametric oscillator in steady-state operation [J]. *J Opt Soc Am B*, 1990, 7: 1385-1401.
- [25] Kumar S C, Esteban-Martin A, Ideguchi T, et al. Few-cycle, broadband, mid-infrared optical parametric oscillator pumped by a 20 fs Ti:sapphire laser [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2014, 8: L86-L91.
- [26] Balskus K, Zhang Z, McCracken R A, et al. Mid-infrared 333 MHz frequency comb continuously tunable from 1.95 to 4.0 μm [J]. *Opt Lett*, 2015, 40: 4178-4181.
- [27] Maidment L, Schunemann P G, Reid D T. Molecular fingerprint-region spectroscopy from 5 to 12 μm using an orientation-patterned gallium phosphide optical parametric oscillator [J]. *Opt Lett*, 2016, 41: 4261-4264.
- [28] Shirakawa A, Kobayashi T. Noncollinearly phase-matched femtosecond optical parametric amplification with a 2 000 cm⁻¹ bandwidth [J]. *Appl Phys Lett*, 1998, 72: 147.
- [29] Cerullo G, Silvestri S D. Ultrafast optical parametric amplifiers [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2003, 74: 1.
- [30] Charbonneau-Lefort M, Afeyan B, Fejer M M. Optical parametric amplifiers using chirped quasi-phase-matching gratings I: practical design formulas [J]. *J Opt Soc Am B*, 2008, 25: 463-480.
- [31] Robert W Boyd. Nonlinear Optics[M]. 2nd ed. Rochester, New York: Elsevier, 2008.
- [32] Govind P Agrawal, Nonlinear Fiber Optics[M]. fifth ed. Rochester, New York: Elsevier, 2012.
- [33] İlday F Ö, Buckley J R, Clark W G, et al. Self-similar evolution of parabolic pulses in a laser [J]. *Phys Rev Lett*, 2004, 92: 213902.
- [34] Proctor B, Westwig E, Wise F. Characterization of a Kerr-lens mode-locked Ti: sapphire laser with positive group-velocity dispersion [J]. *Opt Lett*, 1993, 18: 1654-1656.
- [35] Fernandez A, Fuji T, Poppe A, et al. Chirped-pulse oscillators: a route to high-power femtosecond pulses without external amplification [J]. *Opt Lett*, 2004, 29: 1366-1368.
- [36] Strickland D, Mourou G. Compression of amplified chirped optical pulses [J]. *Opt Commun*, 1985, 56: 219-221.
- [37] Liu P, Zhang Z. Chirped-pulse optical parametric oscillators [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(19): 4735-4738.
- [38] Liu P, Zhang Z. Generation of mid-infrared emission with a 3.1-4.5 μm instantaneous bandwidth from a chirped-pulse optical parametric oscillator [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(16): 3988-3991.
- [39] Liu P, Heng J, Zhang Z. Chirped-pulse generation from optical parametric oscillators with an aperiodic quasi-phase-matching crystal [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(9): 2568-2571.

- [40] Pelouch W S, Powers P E, Tang C L. Ti:sapphire-pumped, high-repetition-rate femtosecond optical parametric oscillator [J]. *Opt Lett*, 1992, 17: 1070-1072.
- [41] Fu Q, Mak G, van Driel H M. High-power, 62-fs infrared optical parametric oscillator synchronously pumped by a 76-MHz Ti:sapphire laser [J]. *Opt Lett*, 1992, 17: 1006-1008.
- [42] P. Jian, W. E. Torruellas, M. Haelterman, et al. Solitons of singly resonant optical parametric oscillators [J]. *Opt. Lett.*, 1999, 24: 400-402.
- [43] Caumes J P, Videau L, Rouyer C, et al. Kerr-like nonlinearity induced via terahertz generation and the electro-optical effect in zinc crystals [J]. *Phys Rev Lett*, 2002, 89: 047401.
- [44] Prawiharjo J, Hung H S S, Hanna D C, et al. Theoretical and numerical investigations of parametric transfer via difference-frequency generation for indirect mid-infrared pulse shaping [J]. *J Opt Soc Am B*, 2007, 24: 895-905.
- [45] Arbore M A, Marco O, Fejer M M. Pulse compression during second-harmonic generation in aperiodic quasi-phase-matching gratings [J]. *Opt Lett*, 1997, 22: 865-867.
- [46] Arbore M A, Galvanauskas A, Harter D, et al. Engineerable compression of ultrashort pulses by use of second-harmonic generation in chirped-period-poled lithium niobate [J]. *Opt Lett*, 1997, 22: 1341-1343.
- [47] Beddard T, Ebrahimzadeh M, Reid T D, et al. Five-optical-cycle pulse generation in the mid infrared from an optical parametric oscillator based on aperiodically poled lithium niobate [J]. *Opt Lett*, 2000, 25: 1052-1054.
- [48] The HITRAN Database. Update to the line-mixing package for CO₂. [2020-06-30]. <https://hitran.org/>.