

2~5 μm 中红外飞秒光学参量振荡器研究进展 (特邀)

田文龙¹, 韩 康¹, 朱江峰^{1*}, 魏志义^{2*}

(1. 西安电子科技大学 物理与光电工程学院, 陕西 西安 710071;

2. 中国科学院物理研究所 北京凝聚态物理国家研究中心, 北京 100190)

摘要: 自 1994 年首次利用克尔透镜锁模钛宝石激光器泵浦 RTA 光学参量振荡器实现中红外飞秒激光输出以来, 在这 20 多年的时间内, 随着高功率近红外泵浦源与各种优质非线性晶体的不断涌现, 中红外飞秒光学参量振荡器在平均功率、脉冲宽度、调谐范围等方面都取得了长足的发展, 为基础科学研究、生物医疗以及国防安全等领域提供了多样化的应用工具。文中将 2~5 μm 中红外飞秒光学参量振荡器分为波长可调谐输出型与宽光谱输出型两类, 分别重点就这两类中红外飞秒光学参量振荡器的国内外研究进展进行综述, 最后对进一步发展趋势进行了展望。高功率、高光束质量中红外飞秒光学参量振荡器和大能量中红外飞秒光学参量振荡器是其中两个重要的发展方向。

关键词: 光学参量振荡器; 超快激光技术; 中红外飞秒激光; 非线性晶体

中图分类号: O436 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20210350

Research progress of 2-5 μm mid-IR femtosecond optical parametric oscillator (*Invited*)

Tian Wenlong¹, Han Kang¹, Zhu Jiangfeng^{1*}, Wei Zhiyi^{2*}

(1. School of Physics and Optoelectronic Engineering, Xidian University, Xi'an 710071, China;

2. Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

Abstract: Since the first use of Kerr lens mode-locked Ti: sapphire laser pumped RTA optical parametric oscillator to achieve mid-infrared femtosecond laser in 1994, with the continuous emergence of high-power near-infrared pump sources and various high-quality nonlinear crystals, the mid-infrared femtosecond optical parametric oscillator had made considerable progress in terms of average power, pulse width, and tuning range in the past two decades, providing diverse application tools for basic scientific research, biomedicine, and national defense security. Mid-infrared femtosecond optical parametric oscillators were divided into two types in this paper: wavelength tunable output type and broadband-spectrum output type. The research progress of these two types of 2-5 μm mid-infrared femtosecond optical parametric oscillators at home and abroad were reviewed respectively. Finally, the further development trend was discussed. In view of the outlook, high-power, high-beam quality mid-infrared femtosecond optical parametric oscillators and high-energy mid-infrared femtosecond optical parametric oscillators are two important development directions.

Key words: optical parametric oscillator; ultrafast laser technology; mid-infrared femtosecond laser; nonlinear crystal

收稿日期: 2021-05-30; 修订日期: 2021-07-15

基金项目: 国家自然科学基金 (61705174, 11774257, 61805205); 陕西省自然科学基金 (2018JQ6061)

作者简介: 田文龙, 男, 副教授, 博士, 主要从事超快激光技术与太赫兹波方面的研究。

通讯作者: 朱江峰, 男, 教授, 博士, 主要从事超快超强激光技术方面的研究。

魏志义, 男, 研究员, 博士, 主要从事超快超强激光技术、精密激光计测方面的研究。

0 引言

2~5 μm 中红外激光覆盖了水分子吸收、特征分子指纹谱、大气窗口和热红外探测器的敏感波段等重要波长,在基础科学、国防、环境、医疗及通信方面有着广泛和突出的应用。尤其是综合了宽光谱、窄脉宽及高峰值功率等特性的中红外飞秒激光,在光谱学研究、癌症诊断、外科手术、材料表征以及阿秒科学等方面均具有重要的应用价值^[1-6]: (1) 高重复频率的中红外飞秒激光是实现中红外光学频率梳的重要前提,后者不仅在精密分子光谱学研究中具有无与伦比的灵敏度和特异性,而且可以实现实时观察多物种反应动力学; (2) 人体细胞分子成分结构的任何变化总是导致细胞本身或其代谢产物的中红外吸收光谱发生变化,因此超快中红外振动光谱学研究为早期检测和诊断阿尔茨海默病或癌症等疾病提供了可能; (3) 由于人体组织对 3 μm 中红外波长具有强烈的吸收,利用这个波长的飞秒激光可以对人体组织进行微米精度的局部切割或移除,同时使手术中可能产生的附加损伤或功能损失降低到最小; (4) 宽带的中红外飞秒激光还是散射型扫描近场光学显微镜 (s-SNOM) 的理想光源,其可以在纳米尺度上记录半导体、生物矿物、聚合物、石英中声子共振或纳米天线中等离子体共振的空间和光谱信息; (5) 周期量级的中红外超快激光是台面级高次谐波产生的重要驱动光源,可以获得截止能量更高的高次谐波阶次,进一步产生更短的阿秒脉冲,获得更高的时间分辨率。因此,随着激光技术的不断发展,超快激光不仅脉冲宽度越来越短、聚焦强度越来越强、平均功率越来越高,而且波长也朝着中红外、中远红外甚至太赫兹波段迅速扩张。中红外飞秒激光已经成为目前超快激光领域中的一个重要研究内容。

基于掺杂激活离子包括稀土离子 (Er^{3+} 、 Tm^{3+} 、 Ho^{3+} 、 Pr^{3+} 、 Dy^{3+} 等) 或过渡金属离子 (Cr^{2+} 、 Fe^{2+} 等) 直接发射的锁模固体或光纤激光器可以产生 2~3.5 μm 波段的飞秒激光,江苏师范大学的马杰教授^[7]和天津大学的胡明列教授^[8]对这方面的工作进行了详细的综述和展望。然而,受限于材料本身的发射特性,一些特定波长的飞秒激光脉冲(如波长在 3.5 μm 以上)目前还无法直接产生,而且中红外锁模激光器在

输出平均功率、脉冲能量等方面,与 1 μm 波段锁模激光器也存在较大差距。

此外,利用非线性光学频率变换的方法,包括参量变换、受激拉曼散射以及超连续产生等,选择合适的非线性材料,通过二阶或三阶非线性效应,可以将近红外波段的飞秒脉冲变换到中红外波段。其中,光学参量变换技术具有转换效率高、增益带宽大以及相位匹配灵活的优点,得益于近红外波段泵浦源和非线性晶体材料的成熟发展,已成为产生高平均功率、宽带连续可调谐中红外飞秒激光最有效的手段。2020年,中国科学院西安光学精密机械研究所的曹华保对基于光学参量放大(或称差频产生)的中红外飞秒光源研究进展进行了综述^[9]。2021年,山东大学的聂鸿坤对基于光学超晶格中红外光学参量振荡器(Optical Parametric Oscillator, OPO)产生连续波、纳秒脉冲以及皮秒脉冲的国内外研究进展进行了系统的整理和分析^[10]。在此基础上,文中拟对 2~5 μm 中红外波段的飞秒 OPO 的国内外研究进展进行综述,首先介绍飞秒 OPO 基本原理并梳理国内外在波长可调谐中红外飞秒 OPO 和宽带中红外飞秒 OPO 方面的研究进展,然后对中红外飞秒 OPO 的发展趋势进行展望。

1 飞秒光学参量振荡技术

光学参量变换是基于二阶非线性效应的三波耦合过程,按能量转移方向可以分为参量下转换过程如差频、OPO 和参量上转换过程如和频、倍频。对于参量下转换过程,如果相互耦合的三个光波的角频率分别为 ω_1 、 ω_2 和 ω_3 ,通常将频率最高的 ω_3 称为泵浦光,把 ω_2 称为信号光,频率最低的 ω_1 称为闲频光。根据能量守恒,相互耦合的三个光波的角频率一定满足以下关系:

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 \quad (1)$$

因此,中红外波段的光学参量变换就是通过某些手段使泵浦光 ω_3 的能量有效的流向闲频光 ω_1 。这些手段主要包括差频产生(Difference Frequency Generation, DFG) 和 OPO。如图 1(a) 所示,高峰值功率的泵浦光 ω_3 和信号光 ω_2 同时通过非线性晶体,产生新的频率成分——闲频光 ω_1 的过程就是 DFG。值得一提的是,能量从泵浦光向闲频光转移的过程中,信号光的能量也会相应的得到放大,因此这个过程对于信号光而言就

称为光学参量放大 (Optical Parametric Amplifier, OPA) 过程。当同时进入非线性晶体的两束光为泵浦光和闲频光时, 则会发生对于闲频光而言的光学参量放大, 文中将这中情况也归类为 DFG。

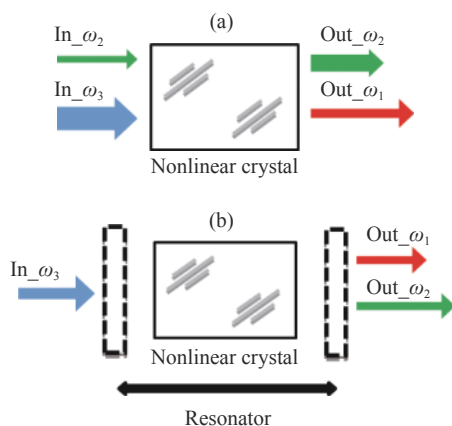


图 1 光学参量下转换示意图。(a) DFG; (b) OPO

Fig.1 Schematic diagram of optical parameter down conversion.

(a) DFG; (b) OPO

当只有泵浦光进入非线性晶体, 由于参量荧光的存在, 结合谐振腔的正反馈作用, 也可以同时获得可观的信号光和闲频光输出, 这种方法就是 OPO, 如图 1(b) 所示。谐振腔的存在降低了 OPO 对入射光能量的要求, 且具有较高的信噪比、好的光束质量以及结构简单、光光转换效率高等优点。

对于光学参量变换, 三波耦合过程可以用耦合波方程来描述。基于慢变包络近似, 考虑二阶非线性极化强度、一阶和二阶色散项, 描述飞秒光学参量变换过程的三波耦合方程组可以写成如下形式:

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial E_1(z,t)}{\partial z} + \frac{1}{v_1} \frac{\partial E_1(z,t)}{\partial t} + \frac{i}{2} k_1'' \frac{\partial^2 E_1(z,t)}{\partial t^2} &= \frac{2i\omega_1^2}{k_1 c^2} d_{\text{eff}} E_3(z,t) E_2^*(z,t) e^{i\Delta k z} \\
 \frac{\partial E_2(z,t)}{\partial z} + \frac{1}{v_2} \frac{\partial E_2(z,t)}{\partial t} + \frac{i}{2} k_2'' \frac{\partial^2 E_2(z,t)}{\partial t^2} &= \frac{2i\omega_1^2}{k_1 c^2} d_{\text{eff}} E_3(z,t) E_1^*(z,t) e^{i\Delta k z} \\
 \frac{\partial E_3(z,t)}{\partial z} + \frac{1}{v_3} \frac{\partial E_3(z,t)}{\partial t} + \frac{i}{2} k_3'' \frac{\partial^2 E_3(z,t)}{\partial t^2} &= \frac{2i\omega_1^2}{k_1 c^2} d_{\text{eff}} E_1(z,t) E_2^*(z,t) e^{i\Delta k z}
 \end{aligned} \quad (2)$$

式中: E_3 、 E_2 和 E_1 分别为泵浦光 ω_3 、信号光 ω_2 和闲频

光 ω_1 的电场复振幅; k_3 、 k_2 和 k_1 为相应的波矢; $\Delta k = k_3 - k_2 - k_1$ 为相位失配量; $k_i'' = \partial^2 k_i / \partial \omega_i^2$ 表示群速度色散 (Group Velocity Dispersion, GVD); v_i 为相应的群速度; d_{eff} 为非线性晶体的有效非线性系数。当忽略色散项时, 可以很容易得到公式 (2) 的一组解析解, 但对于飞秒光学参量变换过程, 非线性晶体中的群速度色散和群速度失配并不容忽视, 这时就需要通过分步傅里叶变换算法对耦合波方程组进行数值求解^[11]。

为了有较为直观的了解, 这里给出忽略色散项和泵浦光消耗时获得闲频光的效率:

$$\eta_1 = \frac{8\pi^2 L^2 \omega_1^2}{\epsilon_0 c^3} \frac{d_{\text{eff}}^2}{n_1 n_2 n_3} I_2 \text{sinc}^2\left(\frac{|\Delta k| L}{2}\right) \quad (3)$$

式中: n_1 、 n_2 和 n_3 为闲频光、信号光和泵浦光在非线性晶体中的折射率; L 为三波耦合相互作用距离; $I_2 = 2\epsilon_0 c n_2 |E_2|^2$ 为信号光强度; ϵ_0 为真空中介电常数。公式 (3) 给出了一个广泛适用的规律, 即闲频光的产生效率与非线性晶体品质因子 ($FOM = \frac{d_{\text{eff}}^2}{n_1 n_2 n_3}$) 以及相位匹配情况息息相关。当满足相位匹配条件即 $\Delta k = 0$ 时, $\text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) = 1$, 转换效率达到最大。

最为常见的两种相位匹配技术分别是双折射相位匹配技术和准相位匹配技术。根据晶体的双折射特性, 如果光波以合适的角度入射, 使得参与相互作用的三个光波的折射率满足 $\omega_1 n_1 + \omega_2 n_2 = \omega_3 n_3$, 就能达到相位匹配的目的。因此双折射相位匹配也称作角度相位匹配。若信号光和闲频光具有相同的偏振, 称之为第 I 类相位匹配; 若它们的偏振相互正交, 则称之为第 II 类相位匹配。为了充分利用非线性晶体最大的有效非线性系数分量 (沿某一特定方向, 但三波沿这个方向传播时不一定能满足双折射相位匹配), 周期性的反转非线性晶体的非线性系数引入一个倒格矢 k_Λ 来补偿相位失配——使 $k_\Lambda = \Delta k$, 也能实现有效的频率转换, 这种技术称为准相位匹配。倒格矢 k_Λ 与非线性系数反转周期 Λ 的关系一般为: $k_\Lambda = 2\pi/\Lambda$, 因此理论上只要选择合适的周期性结构, 就能够在非线性晶体的整个透光范围内得到有效的参量变换。

OPO 由泵浦源、谐振腔和非线性晶体三部分构成。其中, 中红外飞秒 OPO 的泵浦源有钛宝石飞秒激光器 (中心波长~800 nm)^[12]、Yb 飞秒激光器 (中心波长~1 μm)^[13] 及其近红外波段飞秒 OPO^[14] 和 Er 飞

秒激光器(中心波长~1.5 μm)^[15]等。OPO 谐振腔根据腔内振荡光的成分也可以分为两种。当腔内只有信号光或闲频光振荡时,称之为单谐振模式;当信号光和闲频光同时振荡时,称之为双谐振模式。一般而言,双谐振 OPO 的振荡阈值远低于单谐振 OPO,但稳定性也会较差。与纳秒或连续光 OPO 不同,由于参量转换的即时性,飞秒 OPO 需要满足严格的同步泵浦条件,即只有当信号光或闲频光脉冲在腔内往返一次或几次后能够和某个泵浦光脉冲在晶体中重合才会得到增益而被放大。同步泵浦条件通过调节 OPO 腔长使其与泵浦源匹配来实现。一般来说有三种方式。假设 OPO 和泵浦源的腔长分别为 L_{OPO} 和 L_{pump} , 当 $L_{\text{pump}}=NL_{\text{OPO}}$ 、 $NL_{\text{pump}}=L_{\text{OPO}}$ 、 $L_{\text{OPO}}=M/N \cdot L_{\text{pump}}$ 时,都能满足同步泵浦方式。第一种模式下,OPO 的重复频率为泵浦光的 N 倍,即信号光往返 N 次后被第二个泵浦脉冲放大。第二种模式则与之相反,重复频率为泵浦光的 $1/N$,即信号光往返一次与第 $N+1$ 个泵浦光相互作用。第三种模式则是信号光往返 N 次后被第 $M+1$ 个泵浦脉冲放大。

用于产生中红外激光的常用非线性晶体包括双折射相位匹配晶体: 砷酸钛氧钾 (KTiOAsO₄, KTA)、磷锗锌 (ZnGeP₂)、硒镓银 (AgGaSe₂)、硒化镓 (GaSe) 等和准相位匹配晶体: 周期极化的铌酸锂 (PPLN)、周期极化的钽酸锂 (PPLT)、周期取向的磷化镓 (OP-GaP) 和砷化镓 (OP-GaAs) 等,表 1 列出了这些晶体的主要光学性质。常用的氧化物非线性晶体中, KTA 具有很高的抗损伤阈值,但它对 3.5 μm 以上的波段具有较强的吸收,而 PPLN 和 PPLT 晶体对 4 μm 以上的

波段具有较强的吸收,因此它们一般用于信号光单谐振的 OPO。非氧化物非线性晶体具有很高的品质因子,且在长波处的通光范围更大,但由于双光子吸收等因素,无法直接利用成熟的 800 nm 和 1 μm 近红外飞秒激光泵浦。

对于飞秒 OPO,非线性晶体长度的选择至关重要。一方面,从公式 (3) 可知转换效率与非线性晶体长度有关,但由于三波在晶体中的群速度不同,导致它们在晶体中传播一定距离后会发生分离,从而存在一个有效相互作用的距离,又称为有效晶体长度。考虑泵浦光和振荡信号光之间的时间走离,假设泵浦光和信号光的脉冲持续均为 τ ,泵浦光和信号光在晶体中的群速度分别为 v_p 和 v_s ,则泵浦光和信号光的最大有效相互作用距离可通过下式计算:

$$L_{\text{max}} = 2\tau \left| \frac{1}{v_p} - \frac{1}{v_s} \right|^{-1} \quad (4)$$

因此,飞秒 OPO 中非线性晶体的长度一般不超过其最大有效相互作用距离。另一方面,非线性晶体的相位匹配带宽与其长度成反比,如公式 (5) 所示:

$$\Delta\lambda = \frac{0.44\lambda^2}{cL|GVM|} \quad (5)$$

$$GVM = \frac{1}{v_i} - \frac{1}{v_s}$$

式中: v_i 为晶体中闲频光的群速度。因此,为了获得非常宽谱的信号光振荡,需要牺牲一定的晶体长度。相位匹配带宽还与晶体中信号光和闲频光的群速度失配 (Group Velocity Mismatch, GVM) 成反比。因此令飞秒 OPO 工作于简并状态,此时 $v_s=v_i$,也可以获得

表 1 常用中红外非线性晶体的光学性质总结

Tab.1 Summary of the optical properties of widely used mid-infrared nonlinear crystals

Nonlinear crystal	Transmittance range/μm	FOM*/pm ² ·V ⁻²	LIDT**/GW·cm ⁻²	Ref.
PPLN	0.32-5	52.4	0.039 (20 ns@1.56 μm)	[16]
PPLT	0.28-5.5	21	0.14 (30 ns@1.06 μm)	[16]
KTA	0.35-5.3	49.1	1.2 (8 ns@1.064 μm)	[16]
OP-GaAs	0.9-18	246.5	5 J/cm ² (5 ns, 1.064 μm)	[17]
OP-GaP	0.4-13	158.6	-	[17]
ZGP	0.74-12	196	0.03 (30 ns@1.064 μm)	[16]
GaSe	0.62-20	106.8	0.03 (10 ns@1.064 μm)	[16]
AgGaSe ₂	0.76-18	82.3	0.013 (30 ns@1.064 μm)	[16]

*FOM是按照绝对有效非线性系数的最大分量在1 064 nm→1 400 nm+4 433 nm或1 550 nm→2 400 nm+4 376 nm 的泵浦波长下计算的。
**LIDT: 指激光诱导的晶体损伤阈值。

非常大的相位匹配带宽。对于非共线相位匹配方式,晶体的相位匹配带宽则可用公式 (6) 表示:

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda^2}{cL|GVM|} \quad (6)$$

$$GVM = \frac{1}{v_s \cos(\alpha + \beta)} - \frac{1}{v_s}$$

式中: α 和 β 分别为信号光、闲频光与泵浦光的夹角,由此可知,通过引入合适的非共线角,使 $v_s \cos(\alpha + \beta) = v_s$ 同样可以消除 GVM 对相位匹配带宽的限制,获得最大的相位匹配带宽,因此非共线相位匹配是获得宽带 OPO 振荡的另一种有效方案。

2 中红外飞秒 OPO 研究进展

2.1 波长可调谐中红外飞秒 OPO

早在克尔透镜锁模的钛宝石激光器问世不久,人们就已经开始研究中红外飞秒 OPO。图 2 所示为早期的典型中红外飞秒 OPO 实验光路,泵浦源为飞秒钛宝石激光器,非线性晶体为双折射非线性晶体或 PPLN,谐振腔为信号光单谐振模式。泵浦光与信号光之间引入一个小的非共线角,一方面使闲频光与信号光分离,另一方面使腔内振荡的信号光与泵浦光的能流方向保持一致。此外,对于同步泵浦的飞秒 OPO,由于色散的存在,通过调节腔长(移动 M_3 的位置)或改变晶体角度、非共线角,可以实现波长的连续调谐。

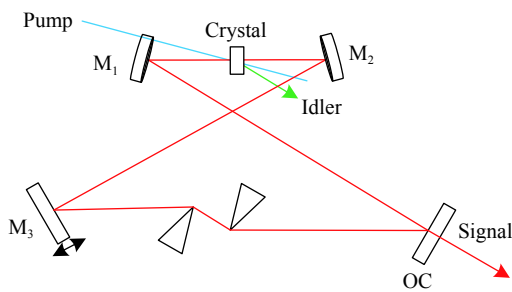


图 2 早期典型的中红外飞秒 OPO 实验光路

Fig.2 Experimental setup of typical mid-infrared femtosecond OPO

1994 年,利用中心波长在 760~820 nm 范围的高功率飞秒钛宝石激光器泵浦 $RbTiOAsO_4$ (RTA) 晶体, P.E. Powers 等人首次实现了输出 1.03~1.3 μm 信号光和 2.15~3.65 μm 闲频光的飞秒 OPO 运转^[18]。随后,基于 $CsTiOAsO_4$ (CTA) 晶体、KTP 晶体以及 $KNbO_3$ 晶体,分别利用钛宝石激光器泵浦获得了 2.59~

4.12 μm ^[19]、3~4 μm ^[20] 和 2.3~5.2 μm ^[21] 的闲频光可调谐输出,在 5.2 μm 的平均功率达到 20 mW^[21]。1997 年, Kent C. Burr 等人首次将 PPLN 用于实现中红外飞秒 OPO,采用重复频率 81 MHz、脉冲宽度 90 fs、平均功率 850 mW、中心波长在 790~815 nm 可调的钛宝石激光器作为泵浦源,获得了 1.7~5.4 μm 范围连续可调谐的闲频光输出,其中 5.4 μm 闲频光的平均功率大于 20 mW^[22]。1999 年, P. Loza-Alvarez 等人使用重复频率 84 MHz、脉冲宽度 100 fs、中心波长 810 nm、平均功率 1.5 W 的钛宝石激光器泵浦 PPLN 晶体实现了从 2.8~6.8 μm 范围的宽调谐闲频光输出,其中当闲频光心波长为 3 μm 时,输出功率大于 60 mW^[23]。2004 年, Karl A. Tillman 等人采用了闲频光单谐振的腔形结构,基于飞秒钛宝石激光器同步泵浦的 PPLN-OPO,获得了 2.1~4.2 μm 范围的闲频光输出^[24]。值得一提的是,该工作中使用的 PPLN 晶体级联了两个不同的极化周期,第一个极化周期产生的非谐振信号光作为泵浦光在第二个极化周期中产生新的闲频光(2.5~4.2 μm),该工作拓展了中红外飞秒 OPO 的相位匹配方案。2014 年, S. C. Kumar 等人报道了利用 PPLN-OPO 产生周期量级中红外飞秒脉冲的工作^[25]。如图 3 所示,利用脉冲宽度 20 fs 的钛宝石激光器同步泵浦仅有 250 μm 长的 PPLN 晶体,结合精细的色散管理,获得了 2.18~3.73 μm 范围可调谐的少周期飞秒脉冲输出,其中闲频光波长为 2.28 μm 时,脉冲宽度为 33 fs,相当于 4.3 个光学周期。

由于钛宝石飞秒激光器的平均功率一般小于 3 W,泵浦 OPO 产生的中红外飞秒激光的平均功率较低。随着高功率 Yb 飞秒激光技术的迅速发展, Yb 飞秒激光同步泵浦的高平均功率中红外飞秒 OPO 得到了广泛关注^[26-32]。2004 年, T. Sudmeyer 等人利用平均功率 58 W、脉冲宽度 780 fs 的 Yb:YAG 飞秒薄片激光器泵浦 PPSLT 晶体,获得了平均功率高达 7.8 W 的 3.57 μm 闲频光输出,如图 4 所示,该工作利用光纤进行反馈,大大缓解了飞秒 OPO 对腔长漂移的敏感性^[26]。

2009 年, Florian Adler 等人利用输出功率 10 W、中心波长 1.07 μm 的 Yb 飞秒光纤激光器泵浦 PPLN,获得了 2.8~4.8 μm 范围可调谐的闲频光输出,闲频光最大输出功率达到 1.5 W,该工作通过把信号光和闲

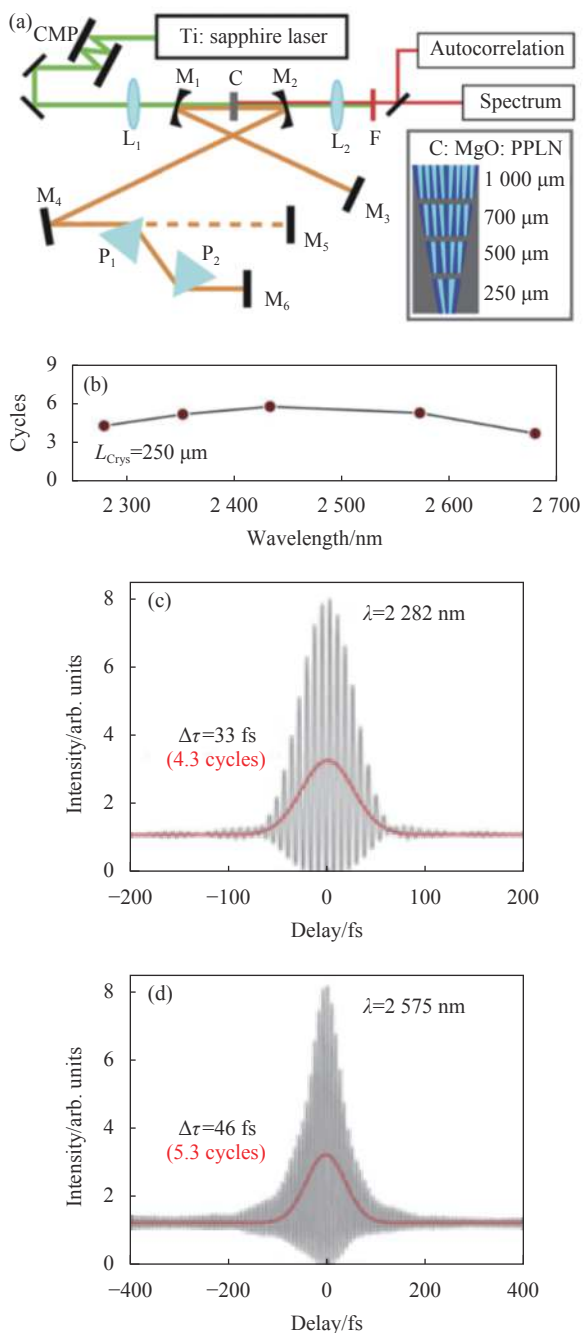


图 3 周期量级中红外光学参量振荡器实验装置和结果^[25]

Fig.3 Experimental setup and results of the few-cycle mid-infrared optical parametric oscillator^[25]

频光同时与泵浦光产生的超连续谱进行锁定, 实现了中红外光学频率梳^[27]。2014年, Lin Xu 等人报道了 Yb 飞秒光纤放大器泵浦的闲频光单谐振 PPLN-OPO^[28], 尽管闲频光调谐范围只有 2.2~2.6 μm, 但在 2.4 μm 获得了近衍射极限的光束质量 ($M^2 \sim 1.05$), 体现了闲频光单谐振的优势。2015年, T. Steinle 等人利用平均功率 7 W、脉冲宽度 450 fs 的 Yb:KGW 飞秒振荡

器泵浦光纤反馈的 PPLN-OPO, 获得了 1.4~2 μm 的信号光和 2~4.2 μm 的闲频光, 信号光最大功率为 1.5 W, 闲频光最大功率为 600 mW, 该可调谐中红外飞秒光源被成功用于近衍射极限的超灵敏红外光谱研究^[29]。同年, Yuwei Jin 等人报道了一种宽带可调谐的双波长中红外飞秒 OPO, 泵浦源为 Yb 飞秒光纤激光器, 采用两块 PPLN 晶体实现了两路闲频光同时输出, 且在 2.9~4.2 μm 范围内可独立调谐^[30], 该光源可用于进一步差频产生远红外甚至 THz 波段超快激光。

2018年, 中国科学院物理研究所研究了 Yb 飞秒激光同步泵浦的 KTA-OPO 输出中红外飞秒激光特性, 利用平均功率 7 W 的 Yb:KGW 飞秒激光器作为泵浦源, 获得了在 2.61~3.84 μm 范围内连续可调谐的闲频光输出, 其中 3.05 μm 处的闲频光功率达到 1.31 W^[31], 总光光转换效率为 51.8%。该实验装置和闲频光波长-功率曲线如图 5 所示。同年, Stefan Popien 等人利用平均功率 6.5 W、中心波长 1035 nm 的 Yb 飞秒光纤激光器同步泵浦非氧化物中红外非线性晶体 HGS, 实现了 4.38~12.43 μm 范围连续可调的闲频光输出, 其中波长为 5.2 μm 的中红外飞秒激光平均功率达到 355 mW, 单脉冲能量达到 4.38 nJ, OPO

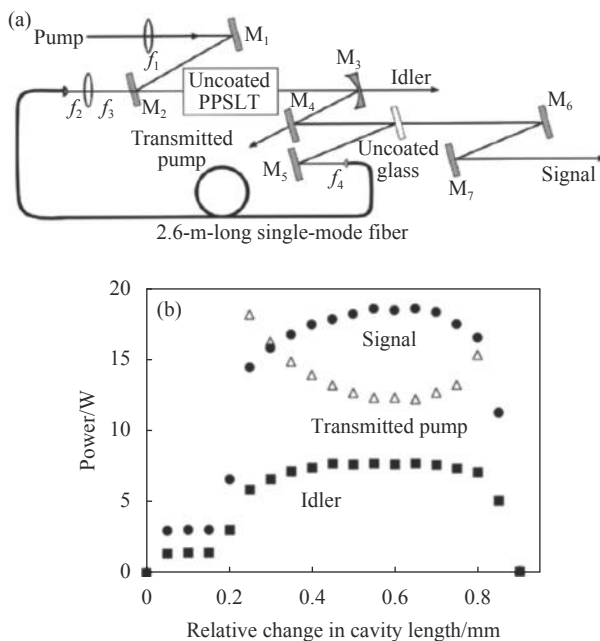


图 4 Yb 薄片飞秒激光器泵浦的高功率中红外飞秒 OPO 实验装置和结果^[26]

Fig.4 Experimental setup and results of high-power mid-infrared femtosecond OPO pumped by a Yb thin-disk femtosecond laser^[26]

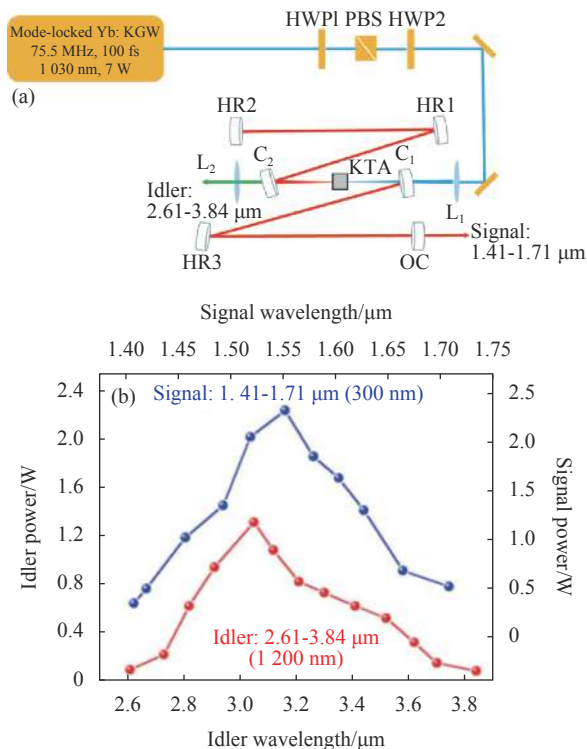


图 5 Yb 飞秒激光同步泵浦的 KTA-OPO 实验光路及信号光和闲频光波长-功率曲线

Fig.5 Yb femtosecond laser synchronously pumped KTA-OPO experimental setup and the corresponding wavelength-power curves of signal and idler

量子效率接近 40% [32]。与传统氧化物中红外非线性晶体如 PPLN 和 KTA 相比,非氧化物中红外晶体如 HGS、AGSe 等的透光范围更大,可以产生波长更长的中红外飞秒激光。但 AGSe 晶体对 1 μm 激光具有较强的双光子吸收,因此需要利用更长波长的飞秒激光对其泵浦 [33]。

与 Yb 飞秒激光器相比,Er 飞秒激光器的输出波长为 1.5 μm,同步泵浦飞秒 OPO 产生的信号光和闲频光都处于中红外波段,因此也引起了人们极大的兴趣 [34-37]。2010 年, Magnus W. Haakestad 等人首次利用中心波长 1.55 μm 的 Er 飞秒光纤激光器泵浦 PPLN 晶体,获得了 2.3~2.7 μm 和 3.7~4.7 μm 范围内连续可调谐的信号光与闲频光 [34],当闲频光波长为 4.0 μm 时,平均功率为 37 mW,脉冲宽度为 480 fs。2012 年, Nicola Coluccelli 等人使用重频为 250 MHz、中心波长 1.55 μm、脉冲宽度 40 fs、输出功率 580 mW 的 Er 光纤激光器泵浦 5 mm 长的 PPLN 晶体,获得了 2.25~2.6 μm(信号光)和 4.1~4.9 μm(闲频光)范围内连

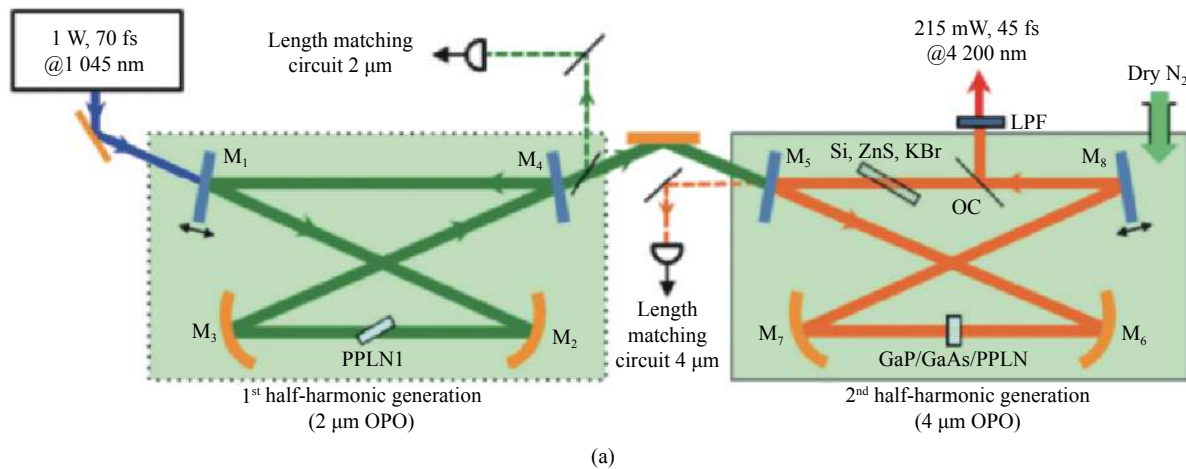
续可调的飞秒中红外激光输出,平均功率为 20~60 mW [35]。2016 年, Bernd Metzger 等人利用平均功率 300 mW 的 Er 光纤飞秒激光器泵浦 AGSe 晶体,得到了最高输出功率 17.5 mW、调谐范围 4.8~6.0 μm 的闲频光输出,其水平方向和垂直方向的光束质量因子 M^2 分别小于 1.1 和 1.3 [36]。

2.2 宽带中红外飞秒 OPO

宽带中红外飞秒激光一直是光学频率梳的重要光源,因此成为中红外飞秒 OPO 的一个重要研究内容。2018 年, Pei Liu 等人为了获得宽带的中红外飞秒激光,提出并实施了一种双通道运转的同步泵浦 PPLN-OPO,产生的闲频光的带宽约为泵浦光带宽的两倍 [38],该文章指出利用这种双通道或多通道结构有望充分利用非线性晶体的相位匹配带宽,获得带宽几倍于泵浦光的中红外飞秒闲频光输出。此外,该课题组又分别采用啁啾脉冲光学参量振荡器 [39] 和非周期性准相位匹配晶体 (APPLN) [40] 实现了直接覆盖 3.1~4.5 μm 和 2.9~5.0 μm 的宽带中红外闲频光输出。

产生宽带中红外飞秒激光的另一个有效方法是飞秒简并 OPO。简并运转的 OPO 是指产生的信号光频率 ω_2 等于闲频光 ω_1 , 即 $\omega_1 = \omega_2 = \frac{1}{2}\omega_3$, 因此简并 OPO 又被称为亚谐波产生 (Sub-harmonic Generation), 此时光学参量变换具有非常大的相位匹配带宽,通过合理控制 OPO 腔内色散可实现超宽带闲频光(信号光)输出,而且简并 OPO 具有固有的锁相特性,在实现中红外光学频率梳方面具有天然的优势。

2011 年, Nick Leindecker 等人首次报道了 Er 飞秒激光器同步泵浦的飞秒简并 OPO,利用 0.5 mm 长 PPLN 晶体获得了平均功率 60 mW、20 dB 光谱带宽覆盖 2500~3800 nm 的中红外飞秒激光输出 [37]。此后,人们分别基于 PPLN、OP-GaAs、OP-GaP 等非线性晶体,利用不同中心波长的泵浦源实现了简并 OPO 运转 [41-50]。其中, Evgeni Sorokin 等人利用级联简并 OPO 装置获得了中心波长为 4.2 μm 超宽带中红外飞秒激光,其光谱半高全宽为 690 nm,通过精细的色散管理,最小输出脉冲宽度为 45 fs,仅相当于三个光学周期 [49]。图 6 所示为该级联简并 OPO 的实验装置和结果。首先利用平均功率 1 W 的 Yb 飞秒光纤激光器泵浦 PPLN 晶体,获得平均功率 500 mW、中心波长 2.09 μm、脉冲宽度 50 fs 的简并光输出,然后将产



	PPLN		GaP		GaAs
Sample thickness	1 mm	1 mm	0.5 mm	0.25 mm	0.25 mm
GDD compensation	5 mm Si	2 mm ZnS	1 mm ZnS + 4 mm KBr	4 mm KBr	1 mm ZnS
Material GDD	40 fs ²	-40 fs ²	-20 fs ²	-10 fs ²	-20 fs ²
Material TOD	20 600 fs ³	4 400 fs ³	2 200 fs ³	1 170 fs ³	2 200 fs ³
Round-trip GDD	85 fs ²	5 fs ²	-15 fs ²	35 fs ²	25 fs ²
Round-trip TOD	28 400 fs ³	12 200 fs ³	10 000 fs ³	9 000 fs ³	10 000 fs ³
Threshold	~1 nJ (250 mW)	~0.4 nJ (100 mW)	~0.5 nJ (125 mW)	~1 nJ (250 mW)	~1 nJ (250 mW)
Slope efficiency	30%	50%	59%	40%	25%
Range of output coupling tuning	~20%	~25%-45%	~25%-45%	~20%	~20%
Max output power	75 mW	200 mW	215 mW	100 mW	60 mW
Spectrum FWHM	265 nm	500 nm	690 nm	695 nm	630 nm
Min duration FWHM	110 fs	60 fs	45 fs	45 fs	50 fs

Dispersion data corresponds to 4.2 μm

图 6 级联简并 OPO 装置产生脉宽短至三个光学周期的中红外飞秒激光^[49]

Fig.6 Mid-infrared femtosecond laser with a pulse width as short as three optical cycles produced by a cascaded degenerate OPO^[49]

生的飞秒简并光作泵浦源,分别研究和对比了基于 OP-GaP、OP-GaAs 和 PPLN 晶体的简并运转输出特性。近年来,瓦级 Tm 光纤放大器和 Cr:ZnS 激光器趋于成熟,能够提供 2 μm 以上的泵浦光,也可以使简并 OPO 的中心波长增加至 4 μm 以上,得到了 3~5 μm 甚至更宽的输出带宽。2012 年, Nick Leindecker 等人使用输出平均功率 1 W、重复频率 75 MHz、中心波长 2.05 μm 的 Tm 光纤激光器做泵浦源,基于 OP-GaAs 的简并 OPO,获得了中心波长 4.1 μm、输出带宽 2.6~6.1 μm、平均功率 37mW 的中红外飞秒激光^[41]。2018 年, Viktor Smolski 等人利用输出平均功率 7.5 W、重复频率 0.9 GHz、中心波长 2.35 μm 的高功率 Cr:ZnS

飞秒激光器作为泵浦源,基于 OP-GaAs 简并 OPO,获得了光谱宽度超过一个倍频程(3~8 μm)的中红外飞秒激光,产生的中红外飞秒激光的平均功率超过了 0.5 W^[50]。

3 总结与展望

2~5 μm 波段中红外激光的重要意义已经不言而喻,但与近红外 800 nm 或 1 μm 波段飞秒激光系统相比,中红外飞秒激光的发展尚不成熟,有待深入研究。中红外飞秒激光的产生主要依赖于非线性频率变换包括光学参量振荡器和差频产生(或光学参量放大),利用 DFG 技术产生的中红外飞秒激光平均功率

已达到了 15 W(中心波长 3.2 μm 、重复频率 100 kHz)^[51], 最大单脉冲能量达到 21 mJ(中心波长 3.3 μm 、峰值功率 0.3 TW)^[52]。与 DFG 技术相比, OPO 只需要一束泵浦光, 不用考虑产生时间同步的种子光(信号光或闲频光), 因此结构简单, 而且转换效率更高。利用 OPO 技术产生的中红外可调谐飞秒激光和宽带飞秒激光代表性结果总结如图 7 所示。可以看出, 高平均功率 (> 1 W) 的中红外飞秒激光主要是基于 PPLN、KTA 和 PPSLT 等氧化物非线性晶体, 这是因为它们可以利用高功率 1 μm 飞秒激光直接泵浦。但由于这些晶体的对 4 μm 以上波长存在较强的吸收, 这类中红外 OPO 目前一般工作于信号光单谐振, 获得高功率中红外飞秒闲频光输出的同时并无法保证具有优秀的光束质量。2014 年, Lin Xu 等人的工作^[28]充分说明闲频光单谐振的中红外 OPO 可获得高光束质量的闲频光输出。因此, 作者认为基于闲频光单谐振运转的高功率、高光束质量中红外可调谐飞秒 OPO 是一个重要研究方向。

首先, 为了使 PPLN 或 KTA 等晶体也可高效率地运转于闲频光单谐振状态, 一方面要通过减小晶体长度抑制其吸收损耗, 另外一方面需增加泵浦提高增益, 近年来高功率、窄脉宽 Yb 飞秒激光器的迅速发展为基于 PPLN 或 KTA 晶体的闲频光单谐振中红外飞秒 OPO 提供了基础。其次, 非氧化物非线性晶体如 GaSe、GaP、CSP 或 ZGP 等对 3~5 μm 范围的吸收系数都比较小^[53], 如图 8 所示, 也比较适合用于闲频光单谐振的中红外飞秒 OPO。但一方面它们对 1 μm 激光存在双光子吸收, 导致损耗高、损伤阈值低, 因此需要利用 Er 飞秒激光器或 2 μm 飞秒激光器泵浦。2021 年, Sergei Tomilov 报道了被动锁模的 Ho:YAG 碟片激光, 获得了平均功率高达 40.5 W 的 1.66 ps 锁模脉冲输出^[54], 可作为基于非氧化物非线性晶体的高功率中红外 OPO 的泵浦源。另一方面, 非氧化物中红外非线性晶体的高质量生长加工也是目前的一个重要课题, 国内对 ZGP 晶体的研究已经取得较大突破, 但整体上在对中红外非线性晶体和中红外镀膜技

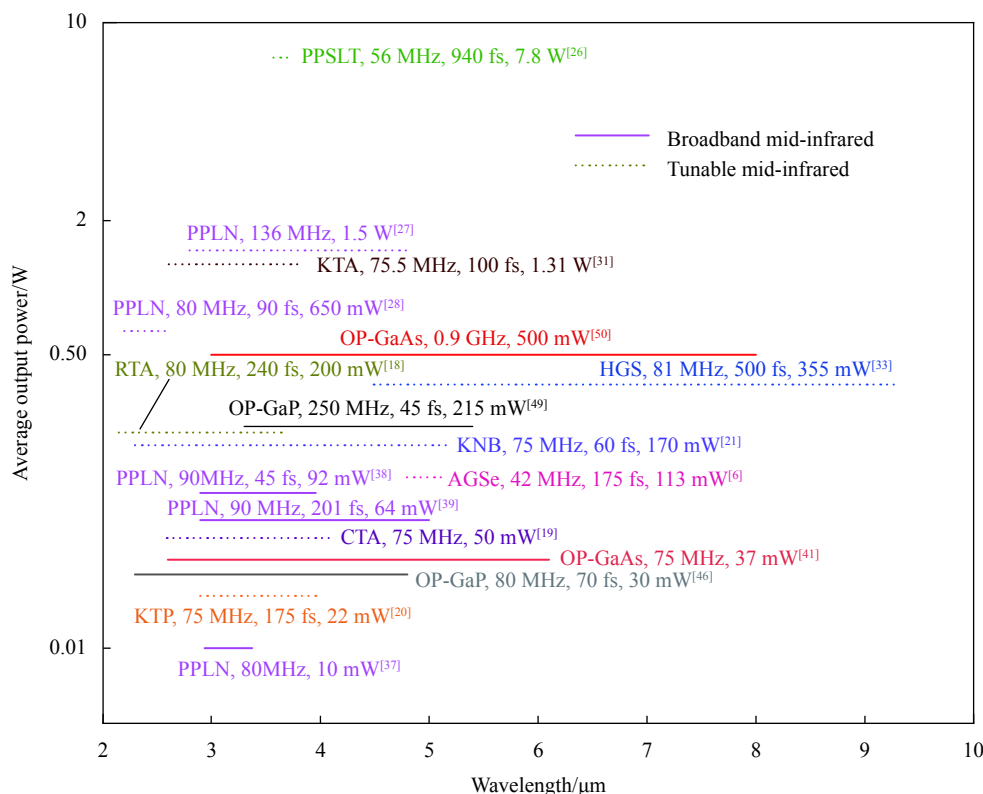


图 7 中红外可调谐飞秒 OPO(虚线代表其调谐范围)和宽带 OPO(实线代表其输出光谱覆盖范围)总结

Fig.7 Summary of the tunable mid-infrared femtosecond OPO (dashed line represents its tuning range) and broadband OPO (solid line represents its output spectral coverage)

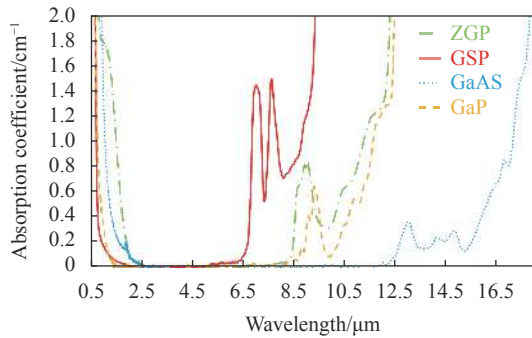


图 8 ZGP、CSP、GaAs 和 GaP 晶体的典型吸收谱^[53]

Fig.8 Typical absorption spectra for ZGP, CSP, GaAs, and GaP^[53]

术方面与美俄等国家相比尚存在较大差距。值得一提的是, 尽管 ZGP 晶体被认为是 3~5 μm 波段性能最优的非线性光学晶体, 但目前尚无基于 ZGP 晶体的中红外飞秒 OPO 的工作报道, 这是因为 ZGP 晶体对 2 μm 波长以下的激光具有较强的吸收, 相信随着 2 μm 高功率飞秒激光器的迅速发展, ZGP 晶体在中红外飞秒 OPO 中也会取得不错的结果。

目前, 飞秒 OPO 输出中红外闲频光的最大单脉冲能量只有~100 nJ 量级^[26], 因此, 利用飞秒 OPO 直接产生大能量中红外飞秒激光也是一个重要的发展方向。与 DFG 相比, OPO 的优势在于谐振腔, 劣势也在于谐振腔——由于谐振腔的限制, 飞秒 OPO 一般被认为只能工作于高重复频率 (>MHz), 产生的飞秒激光脉冲能量只有 nJ 量级。对于信号光单谐振 OPO 而言, 其产生的信号光最低运转重复频率确实取决于谐振腔, 但闲频光的重复频率取决于泵浦源。因此, 利用低重复大能量近红外飞秒激光泵浦信号光单谐振 OPO, 有望直接产生微焦量级的中红外飞秒激光输出。2015 年, L. Xu 等人利用这种方法实现了大能量皮秒 OPO 运转, 泵浦源为脉冲能量 11 μJ、中心波长 1035 nm、重复频率 1 MHz 的 150 ps 脉冲, 泵浦 PPLN-OPO 获得了 2.3~3.5 μm 范围连续可调的大能量皮秒中红外闲频光输出, 最大单脉冲能量达到 1.5 μJ^[55]。而对于闲频光单谐振或双谐振的 OPO, 可考虑通过腔倒空技术^[56]或再生腔的方式^[57]实现大能量中红外飞秒激光输出。此外, 对于中红外飞秒 OPO 的调控新方法、新理论, 如通过非共线相位匹配实现快速波长调谐、引入自相位调制扩展光谱以及结构光产生等方面也因在成像等相关领域应用的特殊优势而引起人

们的极大兴趣。

参考文献:

[1] Schliesser A, Picqué N, Hänsch T W, Mid-infrared frequency combs[J]. *Nat Photon*, 2012, 6: 440-449.

[2] Coddington I, Newbury N, Swann W. Dual-comb spectroscopy [J]. *Optica*, 2016, 3: 414-426.

[3] Crosson E R, Ricci K N, Richman B A, et al. Stable isotope ratios using cavity ring-down spectroscopy: Determination of ¹³C/¹²C for carbon dioxide in human breath [J]. *Analy Chem*, 2002, 74: 2003-2007.

[4] Popmintchev T, Chen M C, Popmintchev D, et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers [J]. *Science*, 2012, 336: 1287-1291.

[5] Schubert O, Hohenleutner M, Langer F, et al. Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations [J]. *Na Photon*, 2014, 8: 119-123.

[6] Hegenbarth R, Steinmann A, Mastel S, et al. High-power femtosecond mid-IR sources for s-SNOM applications [J]. *J Opt*, 2014, 16: 094003.

[7] Ma J, Qin Z P, Xie G Q, et al. Review of mid-infrared mode-locked laser sources in the 2.0-3.5 μm spectral region [J]. *Appl Phys Rev*, 2019, 6: 021317.

[8] Hu M L, Cai Y. Research progress of ultrafast fiber lasers in mid-infrared band [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2020, 47(5): 0500009. (in Chinese)

[9] Cao H B, Wang H S, Yuan H, et al. Development of mid-infrared femtosecond light source based on optical parametric amplification (Invited) [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2020, 49(11): 63-80. (in Chinese)

[10] Nie H K, Ning J, Zhang B T, et al. Research progress of infrared optical parametric oscillator in optical superlattice [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(5): 0501008. (in Chinese)

[11] Witte S, Eikema K. Ultrafast optical parametric chirped-pulse amplification [J]. *IEEE J Quantum Electron*, 2012, 18(1): 296-307.

[12] Liu H, Sun S J, Zheng L, et al. Review of laser - diode pumped Ti: sapphire laser [J]. *Microw Opt Technol Lett*, 2021, 63(8): 1-10.

[13] Chu H, Zhao S, Li G, et al. Mode-locked femtosecond polarization-maintaining Yb-doped fiber laser with a figure-nine configuration [J]. *Opt Commun*, 2021, 482: 126595.

[14] Chu Y X, Bi G Y, Fan J, et al. Dual-wavelength, high-repetition-

- rate, compact femtosecond optical parametric oscillator [J]. *IEEE Photon Technol Lett*, 2020, 32(19): 1269-1272.
- [15] Ssa B, Am C, My D, et al. Soliton mode-locked Er-doped fiber laser by using Al₃ saturable absorber - ScienceDirect [J]. *Optics & Laser Technology*, 2020, 123: 105893.
- [16] Nikogosyan D N. Nonlinear Optical Crystals: A Complete Survey[M]. Berlin: Springer, 2005.
- [17] Konstantin L V. Laser-based Mid-infrared Sources and Applications[M]. New York: John Wiley & Sons, Inc. 2020.
- [18] Powers, P E, Tang C L, Cheng L K. High-repetition-rate femtosecond optical parametric oscillator based on RbTiOAsO₄ [J]. *Opt Lett*, 1994, 19(18): 1439-1441.
- [19] Holtom G R, Crowell R A, Cheng L K. Femtosecond mid-infrared optical parametric oscillator based on CsTiOAsO₄ [J]. *Opt Lett*, 1995, 20(18): 1880-1882.
- [20] Mccahon S W, Anson S A, Jang D J, et al. Generation of 3–4 μm femtosecond pulses from a synchronously pumped, critically phase-matched KTiOPO₄ optical parametric oscillator [J]. *Opt Lett*, 1995, 20(22): 2309-2311.
- [21] Spence D E, Wielandy S, Tang C L, et al. High average power, high - repetition rate femtosecond pulse generation in the 1–5 μm region using an optical parametric oscillator [J]. *Appl Phys Lett*, 1996, 68(4): 452-454.
- [22] Burr K C, Tang C L, Arbore M A, et al. Broadly tunable mid-infrared femtosecond optical parametric oscillator using all-solid-state-pumped periodically poled lithium niobate [J]. *Opt Lett*, 1997, 22(19): 1458-1460.
- [23] Lozaalvarez P, Brown C, Reid D T, et al. High-repetition-rate ultrashort-pulse optical parametric oscillator continuously tunable from 2.8 to 6.8 μm [J]. *Opt Lett*, 1999, 24(21): 1523-1525.
- [24] Tillman K A, Reid D T, Artigas D, et al. Idler-resonant femtosecond tandem optical parametric oscillator tuning from 2.1 μm to 4.2 μm [J]. *J Opt Soc Am B*, 2004, 21(8): 1551-1558.
- [25] Kumar S C, Esteban M A, Ideguchi T, et al. Few-cycle, broadband, mid-infrared optical parametric oscillator pumped by a 20-fs Ti: sapphire laser [J]. *Laser Photon Rev*, 2015, 8(5): L86-L91.
- [26] Südmeyer T, Innerhofer E, Brunner F, et al. High-power femtosecond fiber-feedback optical parametric oscillator based on periodically poled stoichiometric LiTaO₃ [J]. *Opt Lett*, 2004, 29(10): 1111-3.
- [27] Adler F, Cossel K C, Thorpe M J, et al. Phase-stabilized, 1.5 W frequency comb at 2.8–4.8 μm [J]. *Opt Lett*, 2009, 34(9): 1330-1332.
- [28] Xu L, James S F, Han J S, Shen L, et al. Yb-fiber amplifier pumped idler-resonant PPLN optical parametric oscillator producing 90 femtosecond pulses with high beam quality [J]. *Appl Phys B*, 2014, 117(4): 987-993.
- [29] Steinle T, Neubrech F, Steinmann A, et al. Mid-infrared Fourier-transform spectroscopy with a high-brilliance tunable laser source: investigating sample areas down to 5 μm diameter [J]. *Opt Express*, 2015, 23(9): 11105-11113.
- [30] Jin Y, Cristescu S M, Harren F, et al. Broadly, independent-tunable, dual-wavelength mid-infrared ultrafast optical parametric oscillator [J]. *Opt Express*, 2015, 23(16): 20418-20427.
- [31] Meng X H, Wang Z H, Tian W L, et al. Watt-level widely tunable femtosecond mid-infrared KTiOAsO₄ optical parametric oscillator pumped by a 1.03 μm Yb: KGW laser [J]. *Opt Lett*, 2018, 43(4): 943-946.
- [32] Popien S, Beutler M, Rimke I, et al. Femtosecond Yb-fiber laser synchronously pumped HgGa₂S₄ optical parametric oscillator tunable in the 4.4- to 12-μm range [J]. *Opt Engineering*, 2018, 57(11): 111802.
- [33] Marzenell S, Beigang R, Wallenstein R. Synchronously pumped femtosecond optical parametric oscillator based on AgGaSe₂ tunable from 2 μm to 8 μm [J]. *Appl Phys B*, 1999, 69(5): 423-428.
- [34] Lippert E, Arisholm G, Fonnum H, et al. Mid-infrared optical parametric oscillator synchronously pumped by an erbium-doped fiber laser [J]. *Opt Express*, 2010, 18(24): 25379-25388.
- [35] Coluccelli N, Fonnum H, Haakestad M, et al. 250-MHz synchronously pumped optical parametric oscillator at 2.25-2.6 μm and 4.1-4.9 μm [J]. *Opt Express*, 2012, 20(20): 22042.
- [36] Metzger B, Pollard B, Rimke I, et al. Single-step sub-200fs mid-infrared generation from an optical parametric oscillator synchronously pumped by an erbium fiber laser [J]. *Opt Lett*, 2016, 41(18): 4383-4388.
- [37] Pei L, Wang S, He P, et al. Dual-channel operation in a synchronously pumped optical parametric oscillator for the generation of broadband mid-infrared coherent light sources [J]. *Opt Lett*, 2018, 43(9): 2217-2220.
- [38] Liu P, Zhang Z W. Chirped-pulse optical parametric oscillators [J]. *Opt Lett*, 2018, 43(19): 4735-4738.
- [39] Liu P, Heng J, Zhang Z. Mode-locked chirped-pulse generation

- from optical parametric oscillators with an aperiodic quasi-phase-matching crystal [J]. *Opt Lett*, 2020, 45(9): 2568-2571.
- [40] Leindecker N, Marandi A, Byer R L, et al. Broadband degenerate OPO for mid-infrared frequency comb generation [J]. *Opt Express*, 2011, 19(7): 6296-6302.
- [41] Leindecker N, Marandi A, Byer R L, et al. Octave-spanning ultrafast OPO with 2.6-6.1 μm instantaneous bandwidth pumped by femtosecond Tm-fiber laser [J]. *Opt Express*, 2012, 20(7): 7046-7053.
- [42] Lee K F, Mohr C, Jiang J, et al. Midinfrared frequency comb from self-stable degenerate GaAs optical parametric oscillator [J]. *Opt Express*, 2015, 23(20): 26596-26603.
- [43] Ingold K A, Marandi A, Rudy C W, et al. Fractional-length sync-pumped degenerate optical parametric oscillator for 500-MHz 3- μm mid-infrared frequency comb generation [J]. *Opt Lett*, 2014, 39(4): 900-903.
- [44] Smolski V O, Vasilyev S, Schunemann P G, et al. Cr: ZnS laser-pumped subharmonic GaAs optical parametric oscillator with the spectrum spanning 3.6–5.6 μm [J]. *Opt Lett*, 2015, 40(12): 2906-2908.
- [45] Smolski V O, Yang H, Gorelov S D, et al. Coherence properties of a 2.6–7.5 μm frequency comb produced as a subharmonic of a Tm-fiber laser [J]. *Opt Lett*, 2016, 41(7): 1388-1393.
- [46] Ru Q, Loparo Z E, Zhang X S, et al. Self-referenced octave-wide subharmonic GaP optical parametric oscillator centered at 3 μm and pumped by an Er-fiber laser [J]. *Opt Lett*, 2017, 42(22): 4756-4759.
- [47] Haakestad M W, Marandi A, Leindecker N, et al. Five - cycle pulses near $\lambda=3 \mu\text{m}$ produced in a subharmonic optical parametric oscillator via fine dispersion management [J]. *Laser Photon Rev*, 2013, 7(6): L93-L97.
- [48] Marandi A, Ingold K A, Jankowski M, et al. Cascaded half-harmonic generation of femtosecond frequency combs in the mid-infrared [J]. *Optica*, 2016, 3(3): 324-327.
- [49] Sorokin E, Marandi A, Peter G, et al. Efficient half-harmonic generation of three optical-cycle mid-IR frequency comb around 4 μm using OP-GaP [J]. *Opt Express*, 2018, 26(8): 9963-9971.
- [50] Smolski V, Vasilyev S, Moskalev I, et al. Half-Watt average power femtosecond source spanning 3-8 μm based on subharmonic generation in GaAs [J]. *Appl Phys B*, 2018, 124(6): 1-7.
- [51] Nicolas T, Raman M, Kiss B, et al. Highly stable, 15 W, few-cycle, 65 mrad CEP-noise mid-IR OPCPA for statistical physics [J]. *Opt Express*, 2018, 26(21): 26907-26915.
- [52] Fu Y, Xue B, Midorikawa K, et al. TW-scale mid-infrared pulses near 3.3 μm directly generated by dual-chirped optical parametric amplification [J]. *Appl Phys Lett*, 2018, 112(24): 241105.
- [53] Creedon D J, Zawilski K T, Pomeranz L A, et al. Advances in nonlinear optical crystals for mid-infrared coherent sources [J]. *J Opt Soc Am B*, 2016, 33(11): D36-D42.
- [54] Sergei T, Martin H, Jonas H, et al. SESAM-mode locked Ho: YAG thin-disk laser with 40.5 W of average power[C]//CLEO, 2021: SF2M. 3.
- [55] Xu L, Chan H Y, Alam S U, et al. Fiber-laser-pumped, high-energy, mid-IR, picosecond optical parametric oscillator with a high-harmonic cavity [J]. *Opt Lett*, 2015, 40(14): 3288-3291.
- [56] Lamour T P, Reid D T. 650-nJ pulses from a cavity-dumped Yb: fiber-pumped ultrafast optical parametric oscillator [J]. *Opt Express*, 2011, 19(18): 17557-17562.
- [57] Liu Z, Ke L, Yang F, et al. 305- μJ , 10-kHz, picosecond optical parametric oscillator pumped synchronously and intracavity by a regenerative amplifier [J]. *Opt Lett*, 2018, 43(3): 539-542.