

## 超快光纤激光驱动的长波中红外飞秒脉冲光源 (特邀)

刘 洋<sup>1</sup>, 曹 前<sup>2</sup>, 刁新财<sup>1</sup>, 魏志义<sup>1</sup>, 常国庆<sup>1\*</sup>

1. 中国科学院物理研究所 光物理重点实验室, 北京 100190;
2. 上海理工大学 光电信息与计算机工程学院, 上海 200093)

**摘 要:** 基于差频产生的中红外飞秒光源具有波长调谐范围宽 (6~20  $\mu\text{m}$ )、覆盖范围广 (整个“指纹区”) 和系统复杂程度低等优势, 超快光纤激光器驱动的中红外飞秒光源只有差频部分采用了空间光路, 进一步提高了系统的稳定性。文中介绍基于超快光纤激光器驱动的光学差频产生长波中红外飞秒脉冲的技术路线, 阐述在差频过程中如何通过非线性光纤光学技术 (包括超连续谱产生、孤子自频移和光谱滤波技术) 产生合适的信号脉冲, 并从理论上详细介绍差频过程中提高中红外脉冲功率的方法。

**关键词:** 飞秒中红外光源; 光纤激光; 差频产生; 非线性光纤光学技术; 中红外晶体  
**中图分类号:** O432.1<sup>+</sup>2 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20210368

## Longwave mid-IR femtosecond pulse sources driven by ultrafast fiber lasers (*Invited*)

Liu Yang<sup>1</sup>, Cao Qian<sup>2</sup>, Diao Xincal<sup>1</sup>, Wei Zhiyi<sup>1</sup>, Chang Guoqing<sup>1\*</sup>

1. Key Laboratory of Optical Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China;
2. School of Optical-Electrical and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

**Abstract:** The mid-IR femtosecond sources based on difference-frequency generation exhibit many attractive features such as wide wavelength tuning range (6-20  $\mu\text{m}$ ), wide coverage range (the entire “fingerprint” region), and low system complexity. Ultrafast fiber laser driven mid-IR fs sources have higher system stability for using less spatial light path only in difference-frequency part. In this article, the different fiber nonlinear frequency conversion techniques in difference-frequency generation were reviewed. The methods improving mid-IR pulse power in different-frequency generation process were introduced in detail.

**Key words:** fs mid-IR light source; fiber laser; difference-frequency generation; nonlinear fiber optics technology; mid-infrared crystal

收稿日期: 2021-06-03; 修订日期: 2021-07-21

基金项目: 国家自然科学基金 (11774234); 中国科学院仪器设备研制项目 (YJKYYQ20190034); 广东省重点领域研发计划 (2018B090904003)

作者简介: 刘洋, 男, 博士生, 主要从事中红外超快光纤激光器方面的研究。

导师(通讯作者)简介: 常国庆, 男, 特聘研究员, 博士生导师, 博士, 主要从事高功率高能量超快光纤激光技术、超快生物光子学、超快中红外激光技术方面的研究。

## 0 引言

受限于激光材料, 超快激光器通常工作在 0.6~2 μm 的可见光和近红外波长范围, 工作在该波长范围的飞秒光源和相应的飞秒激光频率梳都已经相对成熟。然而很多科研和工业应用需要波长在中红外(2~20 μm) 波段的中红外飞秒光源, 大量分子在该波段经历强烈的特征振动跃迁, 因此中红外光谱学成为在特定环境中定量识别分子(包括同位素异形体)的一种(甚至唯一)可靠的科研手段(见图 1)<sup>[1-2]</sup>。需要特别指出的是, 6~20 μm 的长波中红外频谱范围非常重要, 在光谱学上被称为“指纹区”, 很多分子在该频谱范围内具有特征吸收谱线, 因此能够覆盖这一范围的中红外飞秒光源尤为重要。另外, 位于该分子“指纹区”内的 8~13 μm 对应着地球大气的一个透明窗口(另外一个位于中红外谱区内的窗口是 3~5 μm), 工作在这一波长范围内的中红外光源可以用于大气遥感, 包括探测微量的毒性气体。

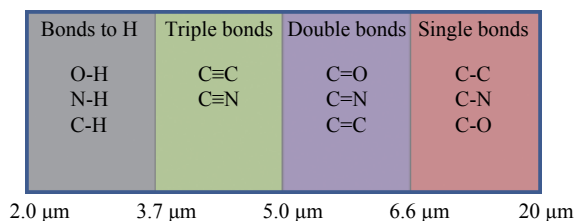


图 1 中红外光谱所对应的四个频谱范围

Fig.1 Four wavelength range in mid-IR spectrum

中红外光源不仅是理解及控制分子物质结构的有力工具, 而且还可以广泛用于对由气体、液体或固体组成的复合系统进行的与物理、化学或生物学相关的非侵入性诊断<sup>[3-5]</sup>。在医学上, 通过检测病人呼出的气体中的某类微量气体分子从而诊断某些特定的疾病, 是中红外飞秒激光频率梳的一个重大潜在应用。利用波长在 1.5 μm 的近红外光学频率梳, Thorpe 等人在 30 s 的测量时间里通过腔增强的手段, 对呼出气体中的氨气、一氧化碳、二氧化碳进行检测。但由于绝大多数气体分子在近红外波段具有非常小的吸收截面, 导致该项技术的吸收灵敏度只能达到 0.002%<sup>[6]</sup>。在中红外波段, 气体分子的吸收截面比近红外波段高出三四个数量级, 因此利用中红外光梳进行腔增强呼吸气体检测, 可以大大提高吸收灵敏度, 检测到并辨识出微量气体分子, 成为一种快速、准

确、便捷的疾病诊断技术。2020 年, F. Krausz 等人提出了光场分辨红外光谱技术, 通过电光采样测量经过生物样品的飞秒长波中红外脉冲, 可以在高灵敏度的情况下同时检测多种分子<sup>[7]</sup>。除了在频谱上的应用外, 中心波长在长波中红外波段的飞秒超短脉冲是研究新型量子材料的有力工具。比如, 已有的对拓扑绝缘体的研究表明, 目前所知的三维拓扑绝缘体的带隙和特征能带结构在 100 meV 以下附近, 对应于 5~15 μm 波长范围。快速发展的长波中红外飞秒光源必将大大促进对拓扑绝缘体等新材料的研究。

由于缺乏合适的飞秒激光增益介质, 长波中红外飞秒光源依赖非线性光学手段间接获得, 通常有两种方案: (1) 由近红外超快激光泵浦一台光参量振荡器(OPO); (2) 由两束重复频率相同、中心波长不同的脉冲序列进行光学差频(DFG)。基于 OPO 的中红外飞秒光源的输出平均功率可以超过 1 W, 但受限于晶体, 一般输出波长在 7 μm 以下。基于该种方案的中红外飞秒脉冲源的光谱调谐范围相对较窄, 而且 OPO 腔需要与泵浦光脉冲锁定。基于光学差频的中红外飞秒光源结构相对简单, 目前成为获取长波中红外飞秒脉冲的主要手段。图 2 展示了基于脉冲间差频产生中红外脉冲的系统构成, 其核心是将一台高功率飞秒激光器输出的脉冲序列分成两束, 其中一束经过一段光纤, 利用光纤中的三阶非线性效应产生中心波长可调谐的飞秒脉冲信号光; 另外一束作为泵浦光, 之后将泵浦光和信号光在空间上和时间上重合, 聚焦到合适的非线性光学晶体中从而产生波长在中红外波段可调谐的飞秒光脉冲。比如利用一台中心波长在 1.03 μm、重复频率为 100 MHz 的飞秒激光器, 采用色散合适的光子晶体光纤, 可以获得波长在 1.08~1.22 μm 范围内调谐的信号光脉冲, 它和 1.03 μm 的泵浦光差频后能够产生波长在 6.6~22 μm 内连续调谐的中红外光脉冲, 该中红外脉冲序列重复频率为 100 MHz。与基于 OPO 的方案相比, 基于光学差频的中红外飞秒光源不需要额外的谐振腔, 系统复杂程度大为降低, 而且具有更宽的波长调谐范围, 可以覆盖 6~20 μm 的整个中红外光谱区域<sup>[8]</sup>。基于光学差频是获得能够覆盖整个“指纹区”的长波中红外飞秒光源的唯一技术手段。

由于可调谐的信号光脉冲可以通过光纤中的非

线性过程产生,因此可以很容易与当前迅猛发展的超快光纤激光技术相结合。基于光学差频的中红外光源的关键技术是获得合适的泵浦光脉冲和信号光脉冲。如图 2 所示,这两个光脉冲通常来自于同一台飞秒激光器。过去 20 年,超快光纤激光获得了长足的发展<sup>[9]</sup>。常见的超快光纤激光有三种:中心波长在 1.03 μm 附近的掺镱光纤激光器,中心波长在 1.55 μm 附近的掺铒光纤激光器,和中心波长在 2.0 μm 附近的掺铥和掺钕光纤激光器。利用啁啾脉冲放大技术,这三种激光可以产生高功率高能量飞秒脉冲,因此被越来越多的科研人员用作产生中红外飞秒脉冲的驱动

激光。另一方面,由于光纤技术的飞速进步,具有高度稳定性的、全光纤化的高功率飞秒激光器成为可能。可以预见,基于全光纤技术的中红外飞秒光源只有差频部分采用了空间光路,整个系统非常紧凑,有望将来在飞行器上搭载这种中红外光源,用于检测空气中的气体成分(比如用于研究雾霾或者远距离检测爆炸物等)。最近 10 年,有关中红外飞秒光源的研究正成为超快激光技术的前沿之一,国际上已有多篇综述介绍该领域的进展<sup>[8,10-14]</sup>。文中将集中介绍由超快光纤激光驱动的长波中红外飞秒光源的发展现状并探讨未来该领域的发展方向。

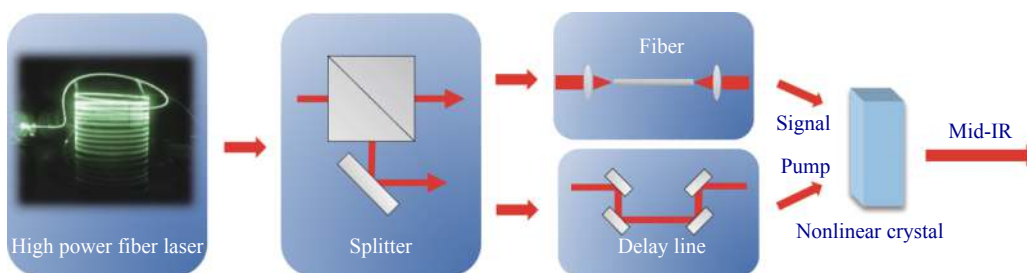


图 2 基于脉冲间差频产生中红外脉冲的系统示意图

Fig.2 Schematic diagram of a system for generating mid-IR pulses based on inter-pulse DFG

### 1 非线性光学差频产生的基本理论和仿真

泵浦光脉冲 ( $\omega_3$ ) 和信号光脉冲 ( $\omega_2$ ) 在非线性光学晶体中会发生光学差频过程,产生中红外闲频光脉冲 ( $\omega_1$ ),这一过程可以用如下的脉冲耦合波方程来描述<sup>[15]</sup>:

$$\frac{\partial A_1(z, \tau)}{\partial z} + \left( \frac{1}{v_{g,1}} - \frac{1}{v_{g,3}} \right) \frac{\partial A_1(z, \tau)}{\partial \tau} + \frac{i\beta_{2,1}}{2} \frac{\partial^2 A_1(z, \tau)}{\partial \tau^2} = i \frac{\omega_1 d_{eff}}{n_1 c} A_3 A_2^* e^{-i\Delta k z},$$

$$\frac{\partial A_2(z, \tau)}{\partial z} + \left( \frac{1}{v_{g,2}} - \frac{1}{v_{g,3}} \right) \frac{\partial A_2(z, \tau)}{\partial \tau} + \frac{i\beta_{2,2}}{2} \frac{\partial^2 A_2(z, \tau)}{\partial \tau^2} = i \frac{\omega_2 d_{eff}}{n_2 c} A_3 A_1^* e^{-i\Delta k z},$$

$$\frac{\partial A_3(z, \tau)}{\partial z} + \frac{i\beta_{2,3}}{2} \frac{\partial^2 A_3(z, \tau)}{\partial \tau^2} = i \frac{\omega_3 d_{eff}}{n_3 c} A_1 A_2^* e^{+i\Delta k z}.$$

式中:  $A_i(z, \tau)$  表示泵浦、信号、闲频光的脉冲包络;  $|A_i|$  为脉冲包络的复振幅,可由  $|A_i| = \sqrt{2I_i / \epsilon_0 n_i c}$  表示;  $\tau$  是相对泵浦脉冲的延迟时间坐标系  $\tau = t - z/v_{g,3}$ ,  $z$  为非线性晶体的纵向坐标;  $v_{g,i}$  为脉冲的群速度

$v_{g,i} = \partial \omega_i / \partial k_i$ ;  $\beta_{2,i}$  表示脉冲的群速度色散。由于方程中包含群速度失配  $(1/v_{g,i} - 1/v_{g,j})$  项和二阶色散项 ( $\beta_{2,i}$ ),即使在近似条件下,耦合波方程也没有解析解, Huang, Shu-Wei<sup>[16]</sup> 针对 OPCPA 装置提出了对于耦合波方程的解析算法,然而,产生中红外的差频过程利用两束超短脉冲作为输入,并且脉冲在晶体内有显著的时域走离现象;进一步的,当泵浦脉冲在差频过程中发生了显著的耗尽现象时,差频过程的强度也会显著变化,无法由简单的代数公式获得差频过程产生的中红外闲频脉冲的脉冲能量。因此,笔者需要利用分步傅里叶算法对脉冲耦合波方程进行数值求解。图 3 画出了 2 mm GaSe 晶体内光学差频过程的计算结果,输入分别为 1.03 μm、100 nJ、170 fs 的泵浦光与 1.15 μm、1 nJ、130 fs 的信号光,两者经过差频后输出中心波长在 9.87 μm 的中红外闲频光脉冲,选取了 43° 的入射角实现了一类相位匹配 (ooe),光斑大小为 200 μm。图 3(a) 显示了晶体输出端的脉冲形貌以及输出的中红外闲频光光谱。在输出端,中红外脉冲能量为 15 pJ,脉冲宽度为 0.8 ps,光谱宽度为 280 nm。如果脉冲的

重复频率为 30 MHz, 则中红外光脉冲的平均功率为 0.45 mW。

在差频过程中, 由于群速度失配效应 (Group-Velocity Mismatch, GVM), 泵浦光脉冲与信号光脉冲之间存在时域走离 (Temporal Walk-off)。如图 3(a) 所示, 红色虚线为在晶体输入端的信号光脉冲, 它在时域相对泵浦光脉冲落后; 红色实线为在晶体输出端的信号光脉冲, 已经走离至泵浦光脉冲的脉冲前沿。此外, 闲频脉冲相对于另外两束脉冲也存在时域走离。图 3(b) 显示了三束脉冲在晶体内沿脉冲传播方向的演化过程, 图 3(c) 显示了闲频光脉冲能量在晶体内随脉冲传播距离的演化。可以看到, 当泵浦光脉冲与信号光脉冲在时域内完全重合时 (约为晶体内 1~1.5 mm 处), 闲频光功率拥有最快的增长速度。

脉冲的时域走离现象限制了 DFG 过程的参量效率, 影响了中红外闲频光的输出功率。为了增强差频过程的能量转化效率, 得到更高功率的中红外闲频

光, 可以通过增加泵浦光脉冲能量 ( $E_p$ )、增加信号光脉冲能量 ( $E_s$ )、增加晶体长度 ( $L$ ) 这三种手段。图 4 显示了在不同  $E_p$ 、 $E_s$  以及  $L$  下差频过程所输出的闲频光脉冲能量 ( $E_i$ )。可以看到, 当  $E_s$  固定为 0.1 nJ、1 nJ 和 10 nJ,  $E_p$  小于 300 nJ 时 (图 4(a) 虚线左侧), 中红外脉冲能量  $E_i$  随着泵浦脉冲能量  $E_p$  的增加而线性增加; 当  $E_p$  大于 300 nJ (图 4(a) 虚线右侧),  $E_i$  开始指数增长。而当  $E_p$  固定为 1 nJ、10 nJ 和 100 nJ,  $E_s$  小于 100 nJ 时 (图 4(b) 虚线左侧), 中红外脉冲能量  $E_i$  也同样随着信号光脉冲能量  $E_s$  的增加而线性增加; 当  $E_s$  大于 100 nJ (图 4(a) 虚线右侧),  $E_i$  的增长逐渐减缓并达到收敛, 表明差频过程开始饱和。当  $E_p$  与  $E_s$  都固定为 100 nJ (图 4(c)), 中红外脉冲能量  $E_i$  随着晶体厚度的增加而逐渐减缓, 在晶体厚度超过 3 mm 后, 中红外脉冲能量保持在 1.55 nJ。

非线性晶体中的光学差频过程是一种二阶非线性光学效应, 因此增加泵浦光脉冲的能量或者信号光

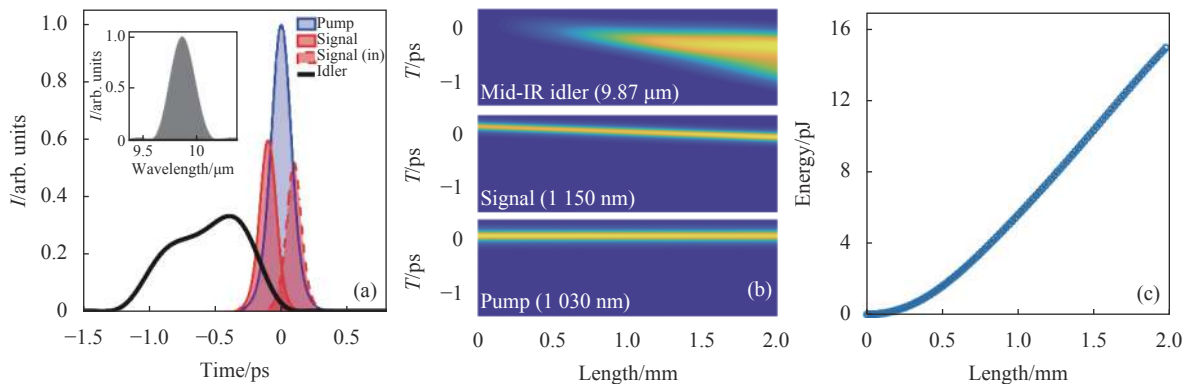


图 3 2 mm GaSe 晶体内光学差频

Fig.3 DFG in 2 mm GaSe

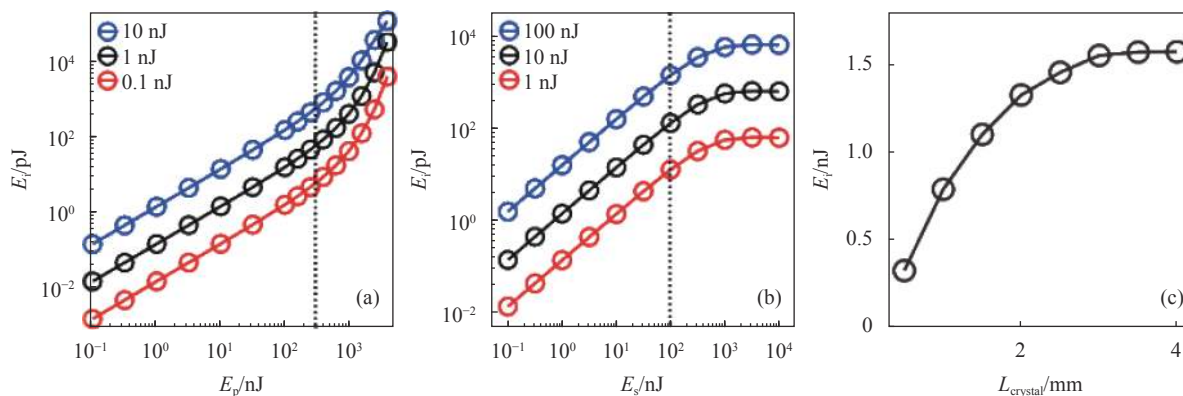


图 4 1.03 μm 驱动的差频过程在不同 (a)  $E_p$ 、(b)  $E_s$  以及 (c)  $L$  下所能输出的闲频光脉冲能量

Fig.4 Effects of (a)  $E_p$ , (b)  $E_s$  and (c)  $L$  on idler pulse energy driven DFG in 1.03 μm



脉冲的能量都可以增加差频之后产生的中红外光脉冲的能量。由于光学差频也是一种光学参量过程,因此目前国际上该领域内存在一种认识,认为光学差频与光学参量放大过程一样,差频后产生的中红外脉冲能量随着泵浦光能量成指数增长,而信号光能量的增加则起到非常小的作用。但是,一味增加泵浦光脉冲的能量,会导致非线性晶体的多光子吸收,最终损伤晶体。因此,晶体的损伤阈值限制了泵浦光脉冲能量。通过计算在 GaSe 晶体中采用 1.03  $\mu\text{m}$  泵浦光作为驱动源的差频过程,可以得出如下结论:

(1) 当泵浦光脉冲能量  $E_p$  与信号光脉冲能量  $E_s$  分别小于一定阈值时,中红外脉冲能量  $E_i$  随着  $E_p$  和  $E_s$  呈线性增长;换句话说,在这一能量区间内,中红外脉冲能量正比于泵浦脉冲和信号脉冲能量之积,笔者称这一能量区间为的差频过程为“线性”工作区间。对于 GaSe 晶体,当入射光波长在 1.03  $\mu\text{m}$  附近时,由于双光子吸收效应,重复频率为 30 MHz 的 170 fs 脉冲的入射能量被限制在 200 nJ 之下,平均功率限制在 6 W,因此光学差频过程必定在线性区以内<sup>[17]</sup>。在此前题之下,为了得到最大功率的中红外闲频光输出,有效的方案是将信号光脉冲能量尽可能地提升至泵浦光的水平,使得  $E_p$  与  $E_s$  的乘积最大。

(2) 当泵浦光脉冲的中心波长在 1.03  $\mu\text{m}$  时, GaSe 晶体内的群速度失配大大降低了差频过程的能量转化效率。同时,因为泵浦、信号光脉冲间的时域分离现象,笔者无法通过增加晶体长度来进一步提升中红外脉冲光的输出能量。

基于以上两点,笔者提出利用 2  $\mu\text{m}$  飞秒脉冲作

为驱动源获得高功率中红外飞秒光源的解决方案。相比于 1.03  $\mu\text{m}$  的泵浦光,利用 2  $\mu\text{m}$  飞秒激光驱动光学差频过程有两点优势:

(1) 将输入光中心波长从 1.03  $\mu\text{m}$  移至 2  $\mu\text{m}$ ,能显著抑制 GaSe 内的多光子吸收现象。参考文献 [18] 表明,对于 GaSe 晶体,2  $\mu\text{m}$  的输入光功率最大可以达到 30 W。

(2) 在 2  $\mu\text{m}$  附近的泵浦光和信号光,与闲频光在光频率上更为接近,因此 2  $\mu\text{m}$  驱动的差频过程中的群速度失配 (GVM) 更小,能量转换效率更高。图 5(a) 对比了在 1.03  $\mu\text{m}/2 \mu\text{m}$  泵浦光驱动下, GaSe 晶体内的泵浦-信号 (p-s) 光脉冲与泵浦-闲频 (p-i) 光脉冲的 GVM 系数。当闲频光为 10  $\mu\text{m}$  时,泵浦-信号脉冲的 GVM 系数分别为 96 fs/mm (1.03  $\mu\text{m}$  驱动) 和 16 fs/mm (2  $\mu\text{m}$  驱动)。显然,更小的 GVM 能使泵浦-信号脉冲在时域上有更多重合;同时,可以利用更长的非线性晶体进一步增强能量转换效率。笔者计算了 100 nJ、2  $\mu\text{m}$ 、170 fs 泵浦脉冲与 1 nJ、2.51  $\mu\text{m}$ 、130 fs 信号脉冲在 4 mm GaSe 中的差频过程,结果如图 5(b)、5(c) 所示。差频过程产生了同样中心波长在 9.87  $\mu\text{m}$  的中红外闲频光脉冲,出射的中红外脉冲能量为 316 pJ,脉冲宽度 300 fs,光谱宽度达 1170 nm。如果脉冲的重复频率为 30 MHz,则中红外光脉冲的平均功率为 9.48 mW。

为了公平比较,笔者进一步计算了在 2 mm GaSe 中利用 2  $\mu\text{m}$  泵浦光脉冲产生 9.87  $\mu\text{m}$  闲频光的差频过程,结果如图 6 所示。对比图 4 中的结果可以看出,利用 2  $\mu\text{m}$  泵浦光驱动光学差频能够大幅度有效

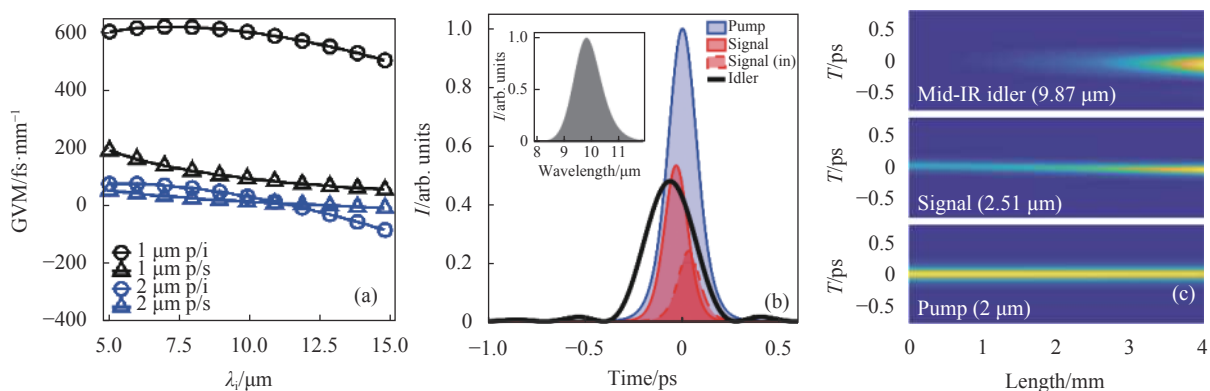


图 5 1.03  $\mu\text{m}/2 \mu\text{m}$  驱动差频时的群速度失配 (a) 和 2  $\mu\text{m}$  驱动 4 mm GaSe 中的差频过程 (b), (c)

Fig.5 (a) Group velocity mismatch in 1.03 and 2  $\mu\text{m}$  driven DFG and (b), (c) 2  $\mu\text{m}$  driven DFG in 4 mm GaSe

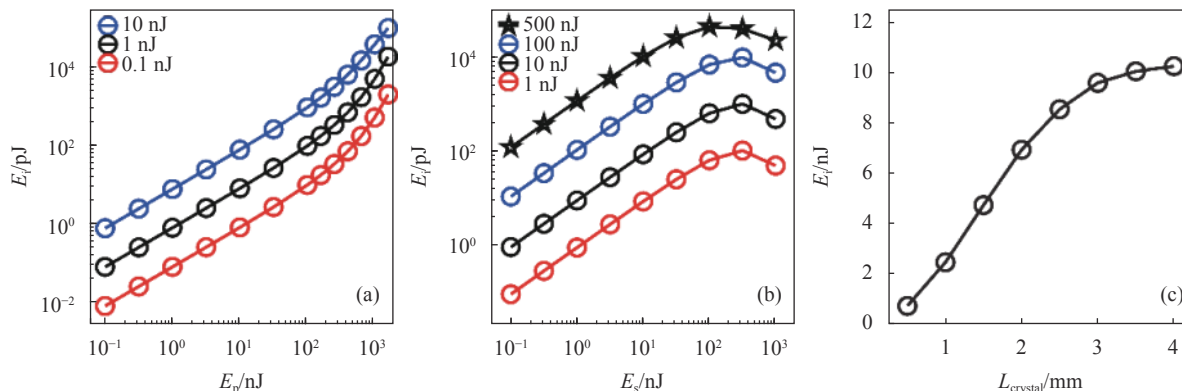


图 6 2 μm 驱动的差频过程在不同 (a)  $E_p$ 、(b)  $E_s$  以及 (c)  $L$  下所能输出的闲频光脉冲能量

Fig.6 Effects of (a)  $E_p$ , (b)  $E_s$  and (c)  $L$  on idler pulse in 2 μm driven DFG

提高所产生的中红外脉冲的能量。如图 6(c) 所示, 当  $E_p$  与  $E_s$  都固定为 100 nJ、晶体厚度在 3.5 mm 时, 中红外脉冲能量能够达到 10 nJ。

## 2 产生信号光脉冲的非线性光纤光学技术

通过脉冲间差频产生中红外飞秒脉冲的关键在于如何产生波长可大范围调谐的信号光脉冲。如图 2 所示, 在利用高功率光纤激光作为驱动源的系统中, 一般采用光纤作为非线性波长转换器件产生信号光脉冲。当特定波长的飞秒脉冲在光纤中传输时, 由于光纤中的三阶非线性效应, 脉冲在传输过程中会积累非线性相移, 从而产生新的光谱成分导致输入光谱剧烈展宽。从展宽后的光谱中选取合适的部分光谱即可在时域中产生信号光脉冲。与非线性光学晶体中的二阶非线性效应相比, 三阶非线性过程所产生的信号光与输入脉冲具有相同的载波包络相移频率  $f_{CEO}$ ; 换句话说, 信号光脉冲与泵浦光脉冲具有相同的  $f_{CEO}$ , 二者在之后的光学差频过程中相抵消, 使产生的中红外脉冲序列的  $f_{CEO}$  自动为零, 并不需要额外的频率稳定回路。在这种情况下, 如果将作为驱动源的高功率超快光纤激光器的重复频率进行锁定, 这样的中红外脉冲源就成为了一台中红外激光频率梳<sup>[8, 19-21]</sup>。中红外激光频率梳一般具有几十万条频率精确稳定的梳齿, 相当于几十万台稳频激光器, 在精密光谱学领域具有广泛的应用。

利用飞秒脉冲在光纤中传输时的非线性光学过程产生信号光脉冲的方式有三种: (1) 超连续谱产生 (Supercontinuum Generation, SCG), (2) 孤子自频移 (So-

liton Self-Frequency Shift, SSFS) 和 (3) 光谱旁瓣滤波 (Self-phase modulation Enabled Spectral Selection, SESS)。下面简单介绍这三种方式。

### 2.1 超连续谱产生

当飞秒脉冲在光纤的负色散区域中传输, 并且其中心波长靠近色散零点时, 在脉冲能量足够的情况下, 该飞秒脉冲演化为高阶孤子。由于存在高阶色散和自陡峭等效应, 高阶孤子分裂为多个中心波长和宽度都不相同的基阶孤子。这些基阶孤子在随后的传输过程中, 受到三阶色散的影响产生在正色散区域中传输的色散波。大多数光纤具有正三阶色散, 在这种情况下, 色散波的波长小于基阶孤子的波长, 而且波长差别一般达到几百纳米。由于每个基阶孤子的中心波长不同, 所产生的色散波的中心波长也不同, 所有这些脉冲的光谱连在一起就构成了超连续谱。利用光子晶体光纤或者特殊的高非线性光纤可以较为容易地获得谱宽超过一个倍频程的超连续谱, 从中滤出不同的光谱成分即可产生中心波长可调谐的信号光脉冲。

### 2.2 孤子自频移

在负色散光纤中传输的飞秒脉冲, 在脉冲能量合适的情况下会演化为基阶孤子。由于受激拉曼散射效应, 基阶孤子光谱的短波长部分会放大光谱的长波长部分, 从而导致光谱随着传输距离而连续向长波长移动, 在时域上产生一个波长红移的基阶光孤子, 被称为拉曼孤子。在光纤长度固定的情况下, 通过改变输入光纤的脉冲能量可以连续调节拉曼孤子的中心波长, 显然这种拉曼孤子可以作为光学差频中的信号

光脉冲。大多数基于差频的中红外光梳都采用光纤中的孤子自频移产生信号光脉冲。

### 2.3 光谱旁瓣滤波

受限于光纤色散和模场面积,利用超连续谱产生和孤子自频移所产生的信号光脉冲的能量一般不到 1 nJ。比如,选取合适的光子晶体光纤可以将 1.03 μm 的飞秒脉冲转化为 1.08~1.7 μm 范围内调谐的信号光脉冲,但脉冲能量仅有 0.05~0.3 nJ。正如笔者在理论部分所指出的,高重频中红外脉冲的能量正比于泵浦光和信号光脉冲能量的乘积,在泵浦光脉冲能量受限于晶体损伤的情况下,如何大幅度提高信号光的脉冲能量成为获得高功率中红外飞秒脉冲源的关键途径。

笔者所在课题组最近提出了一种光谱旁瓣滤波的新方案<sup>[22]</sup>,其工作原理如图 7 所示。该方案的核心在于利用光纤中的自相位调制效应产生分立的频谱旁瓣,之后使用滤波器将中心波长最短和最长的旁瓣滤出从而实现脉冲波长调谐。图 8(a) 和图 8(b) 展示了滤出左边旁瓣所产生的中心波长在 0.7 μm、宽度小于 30 fs 的超短脉冲,脉冲能量为 5.3 nJ;图 8(c) 和图 8(d) 展示了滤出右边旁瓣所产生的中心波长在 1.23 μm 附近、宽度小于 90 fs 的超短脉冲,脉

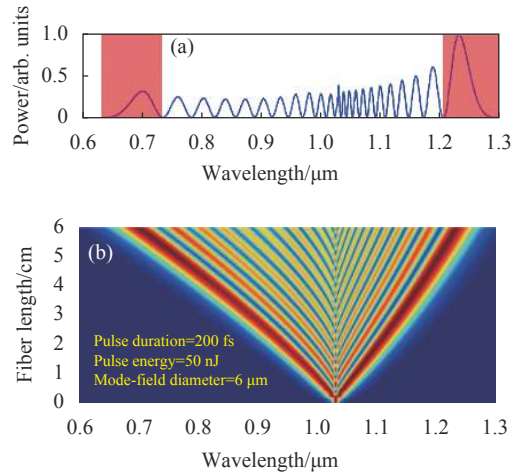


图 7 光谱旁瓣滤波工作原理。(a) 经过 6 cm 光纤后展宽的频谱,滤出最左边和最右边的光谱旁瓣可以产生飞秒脉冲;(b) 脉冲光谱随光纤长度的演化

Fig.7 Principle of SESS. (a) After passing the 6 cm fiber, femtosecond pulses could be generated by filtering out the leftmost and rightmost sidelobes of the spectrum; (b) Evolution of pulse spectrum with fiber length

冲能量为 13 nJ。图中的红线为由对应光谱所计算得到的变换极限脉冲,可见通过光谱旁瓣滤波方式所产生的脉冲非常接近变换极限脉冲。笔者的理论和实验工作证明,该方案能够突破光纤色散、高阶孤子

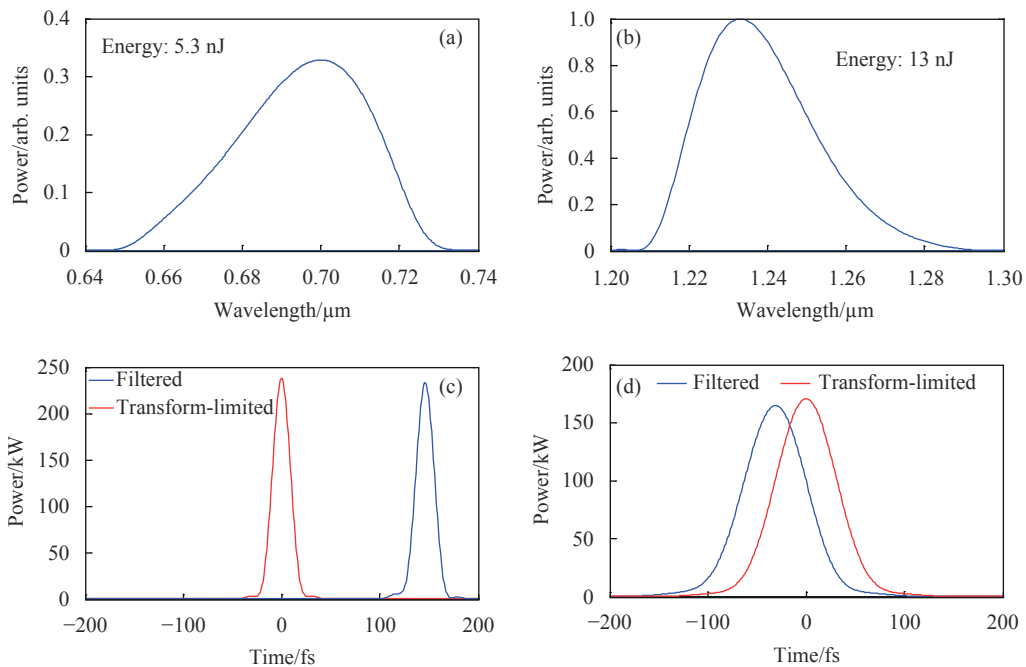


图 8 光谱旁瓣滤波工作原理

Fig.8 Principle of SESS

分裂、相位匹配等限制调谐的因素,具有优异的能量可扩展性。利用掺镱光纤激光器系统,通过光谱旁瓣滤波可以产生波长可在 825 nm~1.21 μm 之间可连续调谐的光脉冲,脉冲宽度在 70~120 fs 之间,将现有基于孤子自频移效应的可调谐脉冲源的脉冲能量提高了 2 个量级<sup>[23]</sup>。

为了进一步拓展波长调谐范围,笔者将旁瓣滤波技术用于中心波长在 1.55 μm 的超快掺铒光纤激光器中,可同时获得 1.3 μm 和 1.7 μm 的飞秒脉冲,同时覆盖生物组织的两个光学窗口<sup>[24]</sup>。在此基础上,我们详尽研究了光谱旁瓣滤波方案的能量可扩展性,实验获得了中心波长分别在 1.3 μm 和 1.7 μm 的大能量(超过 100 nJ)、亚 100 fs 脉冲,峰值功率超过 1 MW,是目前利用光纤激光器所获得的、波长在这两个生物学窗口的最高脉冲峰值功率<sup>[25]</sup>。2020 年,笔者所在课题组提出预啁啾管理光谱旁瓣滤波技术,能够进一步提升系统的脉冲能量利用效率<sup>[26]</sup>。

由于泵浦光和信号光来自于同一台超快激光器,二者之间具有相同的重复频率。但在产生波长可调谐的信号光脉冲时,光纤中的非线性效应可能会将入射光的强度噪声转化为信号光中心波长噪声,这又进一步通过光纤的色散转化为信号光脉冲的相对时域抖动噪声。在利用孤子自频移产生可调谐的信号光脉冲时,为了在频域获得所需要的、完全分离的信号光谱,光纤必须保持一定长度(通常在几十厘米到几米),这导致信号光脉冲累积高达几十飞秒的相对时域抖动噪声,从而极大地恶化了信号光与泵浦光在时域上的同步<sup>[27]</sup>,并通过差频转化为中红外飞秒脉冲的时域抖动噪声和强度噪声,直接导致中红外光梳的相干性降低、梳齿宽度变大以及噪声基底大幅度升高。笔者详细研究了光谱旁瓣滤波飞秒脉冲的噪声特性,发现光纤色散在其中的关键作用。理论和实验均证实,与其他基于非线性光纤光学的波长变换手段相比,光谱旁瓣滤波技术能够有效抑制噪声转化,所产生的飞秒脉冲的时间抖动噪声仅有 100 as 左右,比常用的孤子自频移技术低两个数量级<sup>[28]</sup>。

### 3 中红外晶体

非线性光学晶体是通过差频获得中红外飞秒脉

冲的最为关键的器件。工作中红外波段的非线性光学晶体主要分为氧化物晶体和非氧化物晶体两类。大多数标准的中红外氧化物晶体已有成熟的生长技术,广泛用于非线性光学领域。但是,由于固有的多声子吸收,中红外氧化物晶体的透明范围一般在 5 μm 以下,因此不能用于通过光学差频产生生长波中红外脉冲。中红外非氧化物晶体,例如一元或多元磷化物,砷化物或硫属化物(硫化物、硒化物和碲化物),比氧化物晶体具有更宽的工作波长范围,适合用来产生生长波中红外脉冲。通常,这些非氧化物晶体比氧化物晶体需要更复杂的生长过程,通常导致更多的晶体缺陷、更低的损伤阈值以及高于一个数量级的光损耗。在过去的 20 年中,对长波中红外晶体的深入研究推动着中红外激光光源的发展。表 1 给出了几种最广泛使用或最具有前景的新型中红外非氧化物晶体<sup>[12]</sup>。

表 1 中,负单轴晶体硫镓银 AgGaS<sub>2</sub>(AGS) 和硒镓银 AgGaSe<sub>2</sub>(AGSe) 具有适中的有效非线性系数  $d_{eff}$ ,已被广泛用作中红外光学差频晶体。其较大的能带带隙允许它们可以使用 1 μm 和 1.5 μm 飞秒激光进行泵浦而不发生双光子吸收。但是,AGS、AGSe 以及同属于一族的正单轴晶体碲镓锂 LiGaTe<sub>2</sub>(LGT) 都具有较低的热导率和损伤阈值,不适用于利用高功率飞

表 1 几种最广泛使用或最具有前景的新型中红外非氧化物晶体<sup>[12-13]</sup>

Tab.1 Several of the most widely used or most promising new mid-IR non-oxide crystals

Mid-IR non-oxide nonlinear crystals	Transparency range/μm	$d_{eff}/\text{pm}\cdot\text{V}^{-1}$
AgGaS <sub>2</sub> (AGS)	0.5-13	23
AgGaSe <sub>2</sub> (AGSe)	0.7-18	41
ZnGeP <sub>2</sub> (ZGP)	2.0-11	75
CdSiP <sub>2</sub> (CSP)	0.7-9	85
GaSe	0.7-18	54
HgGa <sub>2</sub> S <sub>4</sub> (HGS)	0.5-13	31
LiInS <sub>2</sub> (LIS)	0.4-12	16
LiInSe <sub>2</sub> (LISe)	0.5-12	10
LiGaS <sub>2</sub> (LGS)	0.3-11	10
LiGaSe <sub>2</sub> (LGSe)	0.4-13	18



秒激光作为泵浦光<sup>[12-13]</sup>。

正单轴晶体磷锗锌 ZnGeP<sub>2</sub>(ZGP)、砷硅锌 ZnSiAs<sub>2</sub>(ZSA)、砷锗镉 CdGeAs<sub>2</sub>(CGA) 和负单轴晶体磷硅镉 CdSiP<sub>2</sub>(CSP) 同属于 II-IV-V<sub>2</sub> 族系。该族系中红外晶体具有较高的有效非线性系数  $d_{eff}$  和良好的热机械特性,同时伴随着较高的损耗。其中 CGA 的有效非线性系数极高,但较强的吸收使其不适用于用高功率激光来泵浦。ZGP、CGA 和 CSP 的最短泵浦波长分别被限制在 2 μm、4.6 μm 和 1 μm 左右,需要选择合适的泵浦波长以避免多光子吸收的影响<sup>[12]</sup>。

硒化镓 (GaSe) 是一种负单轴非线性晶体,具有很大的非线性和双折射性,但是损伤阈值和导热率较低,并且它是一种柔软的解理化合物,很难进行抛光和镀膜。由于具有较大的双折射,该晶体几乎能够在任何三波过程中实现相位匹配,但也同时引入较大的空间走离效应。此外,该晶体只能垂直于光轴切割,使得某些相位匹配无法实现。相比而言,硒化镉 (CdSe) 具有较低的双折射和非线性系数,但其生长技术很成熟,残余损耗非常低,可实现大尺寸制作<sup>[12,29]</sup>。

硫镓汞 HgGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub>(HGS) 作为其所处族系化合物的代表,因其和 AGS 具有类似的透明窗口,经常和 AGS 进行比较,其优点是有效非线性系数较高 (31 pm/V),约为 AGS 的 1.8 倍,并且损伤阈值更高。缺点是多阶段的生长过程使得大尺寸制作较为困难,在过去的几十年中,制造工艺的改善使得 HGS 的实际使用价值得到进一步认可<sup>[12-13]</sup>。

为了实现更高的损伤阈值,需要寻找具有较宽带隙的中红外化合物。相比于 AG 类似物 (AGS, AGSe 等),硫铟锂 LiInS<sub>2</sub>(LIS)、硒铟锂 LiInSe<sub>2</sub>(LISE)、硫镓锂 LiGaS<sub>2</sub>(LGS) 和硒镓锂 LiGaSe<sub>2</sub>(LGSe) 等四种三元硫族化合物具有更宽的带隙,能工作于 800 nm 的泵浦条件而不发生双光子吸收。纤锌矿型结构使其具有更好的热机械性能和抗损伤性能。但是,该类化合物的非线性系数极低,仅与某些氧化物非线性晶体相当<sup>[12,30]</sup>。

具有立方结构的闪锌矿半导体例如二元 GaP, InP, GaAs, InAs, ZnSe 和少量其他磷化物、砷化物、锑化物和硫族化合物具有极大的非线性系数、良好的导热性、高纯度和低损耗,以及与铁电氧化物相比在中红

外波段更好的透明度,但是,它们的光学各向同性排除了利用双折射实现相位匹配的可能,严重限制了这些材料在光学差频中的应用<sup>[12]</sup>。

为了提高非线性过程的转化效率,可以改变晶体取向以获得最大的  $d_{eff}$  值;然而,晶体取向的改变将破坏相位匹配条件,进而降低转化效率。解决这个问题的办法是,在固定晶体取向以获得最大  $d_{eff}$  的同时,对晶体施加高电压将非线性晶体的光轴反向,使得晶体的  $d_{eff}$  值呈正负周期性变化。从相位关系的角度看,在  $d_{eff}$  为正值区域积累的相位失配,将在  $d_{eff}$  为负值的区域得到补偿,总的相位失配为零,进而保证能量一直从泵浦光向闲频光转移,这种方法叫做准相位匹配技术。周期极化铌酸锂 (Periodically Poled Lithium Niobate, PPLN) 是一种常用的基于准相位匹配技术的非线性晶体,其光轴方向与入射光波矢方向垂直,满足非临界相位匹配条件,具有较大的接受角度,已被广泛应用于 0.4~4.5 μm 波长范围内的光学差频<sup>[31]</sup>。

尽管 PPLN 已经展现出优于普通晶体的性能,但是,并不是所有的晶体材料都能通过加电压进行周期极化的方式实现准相位匹配,例如前面提到的具有立方结构的砷化镓 (GaAs) 晶体的非线性系数极高,但制备 PPLN 的技术对砷化镓无效,并且它是光学各向同性晶体,不能通过双折射实现相位匹配。为了将准相位匹配技术用于具有立方结构的非线性晶体,科研人员研发出一种新型生长技术,可以直接生长出极性方向周期性反转的非线性晶体,其生长原理如图 9 所示<sup>[12]</sup>。首先生长出具有一定极性方向的砷化镓基底,并附着一层锗缓冲层,在其上生长与基底极性方向相

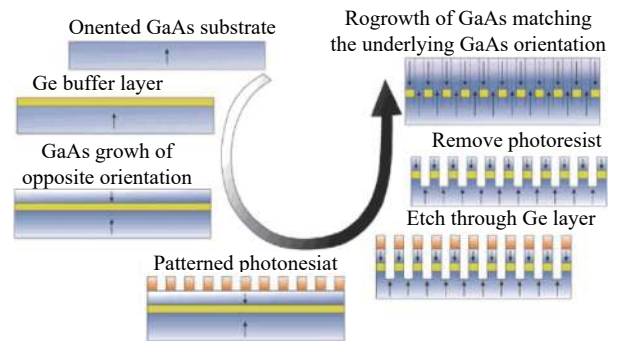


图 9 周期性反转砷化镓晶体的生长过程<sup>[12]</sup>

Fig.9 Growth process of OP-GaAs<sup>[12]</sup>

反的砷化镓,利用掩模板搭配光刻技术将晶片刻蚀至基底,之后在被光刻刻蚀的区域生长与基底极性方向相同的砷化镓,最终获得极性方向周期性反转的砷化镓晶体,一般称为 Orientation-patterned GaAs, 简称为 OP-GaAs。利用类似的工艺,科研人员还制备了 OP-GaP 晶体。OP-GaAs 和 OP-GaP 能够同时满足准相位匹配和非临界相位匹配条件,并且具有极高的有效非线性系数,在中红外飞秒脉冲技术的发展中具有极大的应用潜力<sup>[12]</sup>。

#### 4 由超快光纤激光驱动的基于脉冲间差频的中红外飞秒源

此节将回顾过去 10 年由超快光纤激光驱动脉冲间差频获得中红外飞秒脉冲的主要进展。笔者将根据信号光脉冲产生的三种技术:超连续谱产生、孤子自频移和光谱旁瓣滤波,分别予以介绍。表 2 总结了基于这三种技术产生长波中红外飞秒脉冲的实验结果,为了更直观地了解该领域的发展,图 10 展示了平均功率超过 0.1 mW 的长波中红外飞秒脉冲的实验结果。

表 2 超快光纤激光驱动差频产生获得长波中红外光源文献汇总

Tab.2 Summary of ultrafast fiber laser driven DFG to obtain long-wave mid-IR light source

Method <sup>1</sup>	Signal	Pump	NLCs	Mid-IR	Photon efficiency <sup>2</sup>	Ref.
SC	1.105 μm	50 MHz, 200 mW, 200 fs 1.038 μm	GaSe	400 μW @ 17.5 μm	3.4%	[32]
	43-58 mW 1.250-1.285 μm	40 MHz, 320 fs 330-480 mW 1.02-1.04 μm	AgGaS <sub>2</sub>	3 mW @ 5.5 μm	3.4%	[33]
	1.103-1.109 μm 80 mW @ 1.103 μm	50 MHz 1350 mW @ 1.04 μm 1.038-1.046 μm	GaSe	16-20 μm 1.5 mW @ 18 μm	1.9%	[34]
	40-50 mW, 1.24-1.26 μm	40 MHz, 300 mW 0.97-1.092 μm (SPM)	AgGaS <sub>2</sub>	0.64 mW @ 4.5 μm 4.2-9 μm	1.0%	[35]
	300 mW, 2.03 μm 130 fs	100 MHz, 350 mW, 72 fs 1.55 μm	CdSiP <sub>2</sub> (CSP)	15 mW, 6.5 μm (2.3 optical cycles, 5.5-8 μm)	18.0%	[36]
	0.6 W, 60 fs 1.8-1.96 μm	93.4 MHz, 1.6 W, 110 fs 1.55 μm	OP-GaP	69 mW @ 7.4 μm 6-11 μm	20.6%	[37]
	1.103 μm	50 MHz, 200 mW, 200 fs 1.038 μm	GaSe	20 μW @ 18 μm	0.2%	[38]
	<100 mW, 340 fs, 1.6-1.865 μm	37 MHz, 300 mW, 640 fs 1.55 μm	GaSe & AgGaSe <sub>2</sub>	up to 1.5 μW, 9.7-14.9 μm	0.003 1%	[39]
	30 mW @ 2.5 μm	72 MHz, 145 fs 430 mW @ 1.95 μm	OP-GaAs	1.3 mW 6.7-12.7 μm	3.4%	[40]
	5-25 mW 1.15-1.65 μm	151 MHz, <80 fs 1.4-1.9 W @ 1.055 μm	GaSe	up to 1.5 mW @ 4.7 μm 3-10 μm	0.5%	[41]
100-250 mW, 84 fs 1.76-1.93 μm	250 MHz, 550 mW, 50 fs 1.55 μm	GaSe	4 mW @ 7.8 μm 8-14 μm	3.7%	[42]	
150-235 mW, 80 fs 1.93 μm	48 MHz, 175 mW, 65 fs 1.56 μm	OP-GaP	7.4 mW @ 7.5 μm 6-9 μm	20.3%	[43]	
300 mW, 80 fs 1.965 μm	125.07 MHz, 200 mW 65 fs 1.56 μm	OP-GaP	5 mW @ 7.7 μm 6-9 μm	12.3%	[44]	
SESS	<600 mW, 120 fs 1.1-1.2 μm	30 MHz, <6 W, 165 fs 1.03 μm	GaSe	5.4 mW @ 9.5 μm 7-18 μm	0.8%	[17]

1. Method: 信号脉冲产生方法, 2. Photon efficiency:  $E_i \times \omega_i / (E_p \times \omega_p)$

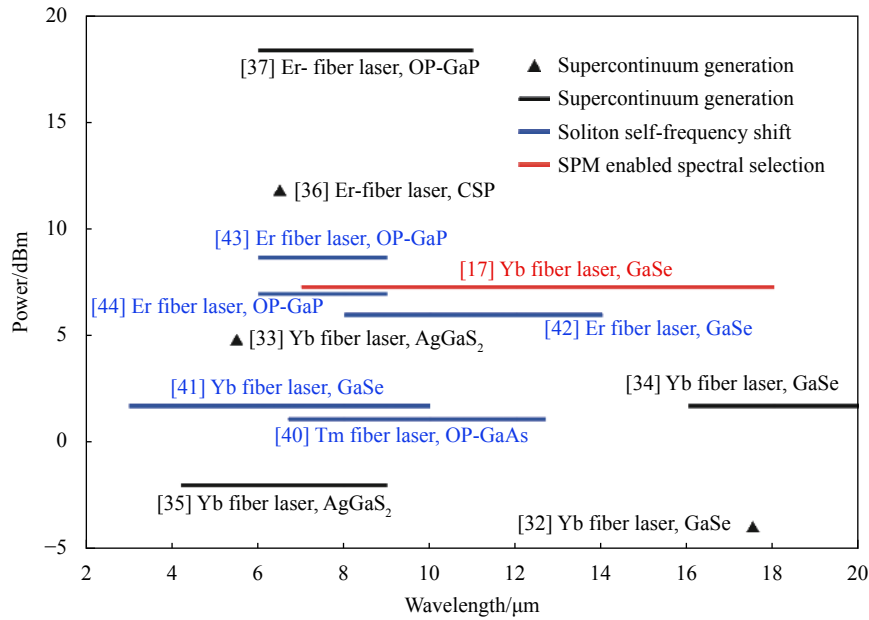


图 10 目前最前沿的基于脉冲间差频产生的长波中红外光纤激光光源

Fig.10 State-of-the-art long wave mid-IR fiber laser sources based on inter-pulse DFG

#### 4.1 基于超连续谱产生获得信号光脉冲

利用超连续产生差频过程中的信号光一般是在光子晶体光纤中实现,通过设计光子晶体光纤中色散零点的个数以及位置,可以实现不同的展宽机制,从而产生不同机制的信号脉冲。比如只有一个色散零点的情况下,可以利用光子晶体光纤产生连续谱,然后利用滤波器将信号脉冲过滤出来,再利用增益光纤对泵浦脉冲和信号脉冲同时进行啁啾脉冲放大。2011年, D. Strickland 课题组利用掺铒光纤对 1038 nm 泵浦脉冲和 1105 nm 的信号脉冲同时啁啾脉冲放大,然后在 GaSe 中差频得到平均功率为 400 μW 的波长为 17.5 μm 的中红外脉冲输出<sup>[32]</sup>。次年,该课题组在光子晶体光纤前增加一级预放大,通过优化预放大的功率,实现了 1103~1109 nm 可调谐的信号脉冲,同 1038~1046 nm 可调谐的泵浦脉冲差频,得到 16~20 μm 可调谐的中红外脉冲输出,并且在 18 μm 处得到了 1.5 mW 的最高平均功率<sup>[34]</sup>。直接将连续谱的一部分作为信号脉冲的缺点在于其功率比较低,可以选择超连续谱在另外一种增益介质增益谱内的成分,对其进行放大,从而提高中红外脉冲的输出功率。2014年, D. Sánchez 等人从掺铒光纤激光器出发,产生至 2 μm 的超连续谱,将 2.03 μm 的成分再用掺铒光纤放大至 300 mW,最后在 CdSiP<sub>2</sub>(CSP) 晶体中差频得到了中心波长为 6.5 μm、光谱宽度支持 2.3 个光学周期、平均

功率至 15 mW 的中红外脉冲输出<sup>[36]</sup>。基于此种方法,通过改变准相位匹配晶体的极化周期便可以实现可调谐的中红外脉冲输出。2017年, M. E. FERMANN 课题组选用 OP-GaP 这种准相位匹配晶体,实现了波长在 6~11 μm 的中红外脉冲输出,其中在 7.4 μm 处得到了 69 mW 的最大平均功率<sup>[37]</sup>。

在有相邻比较近的两个色散零点情况下,脉冲在正色散区域可以产生与泵浦脉冲相距一定波长的窄带宽的斯托克斯脉冲。2012年, Y. Yao 等人利用双色散零点光子晶体光纤产生带宽 35 nm 的中心波长为 1267 nm 的斯托克斯脉冲,再与中心波长 1030 nm 的泵浦脉冲在 AgGaS<sub>2</sub> 中差频得到 3 mW 中心波长为 5.5 μm 的中红外脉冲输出<sup>[33]</sup>。产生的斯托克斯脉冲中心波长取决于光纤的色散曲线,实现斯托克斯信号脉冲可调谐需要更换不同色散曲线的光纤,操作起来比较复杂。为了利用这种方法实现可调谐差频中红外脉冲输出,该课题组于 2013 年在泵浦脉冲一路增加了一小段光子晶体光纤,利用自相位调制实现泵浦脉冲在 970~1092 nm 可调谐,然后与斯托克斯信号脉冲在 AgGaS<sub>2</sub> 中差频得到波长在 4.2~9 μm 可调谐的中红外脉冲,在 4.5 μm 处得到 0.64 mW 的最高平均功率<sup>[35]</sup>。

#### 4.2 基于孤子自频移获得信号光脉冲

很多课题组利用负色散光纤中的孤子自频移来

产生信号脉冲<sup>[38-44]</sup>, 并通过改变耦合进光纤的脉冲能量改变红移孤子的中心波长。对于掺镱光纤激光器来说, 一般需要特定的光子晶体光纤在 1.03 μm 处实现负色散。这些光纤具有极高的非线性, 导致产生的波段在 1.07~1.2 μm 范围内的拉曼孤子脉冲能量很小, 不到 0.2 nJ。2012 年, Marco Marangoni 等人利用掺镱光纤激光器得到中心波长在 1055 nm 泵浦脉冲, 平均功率为 1.4~1.9 W; 同时利用光子晶体光纤中的孤子自频移产生了平均功率为 5~25 mW、波长在 1.15~1.65 μm 范围内可调谐的信号光脉冲。通过在 GaSe 中差频, 得到了波长范围在 3-10 μm 的中红外脉冲, 并且在波长为 4.7 μm 处得到了 1.5 mW 的最高平均功率<sup>[41]</sup>。

大多数光纤在 1.55 μm 波长处为负色散, 因此多个课题组采用高功率的掺铒飞秒激光器作为驱动源, 以便轻松地在普通单模光纤中产生能量更高的红移拉曼孤子信号脉冲。2010 年, R. A. Bartels 课题组使用 1.55 μm 的掺铒光纤激光器产生泵浦光脉冲, 用波长在 1.6~1.865 μm 范围内可调谐的拉曼孤子作为信号脉冲, 通过在 GaSe 中差频产生了波长在 9.7~14.9 μm 范围内可调谐的长波中红外脉冲<sup>[39]</sup>。虽然调谐范围更宽, 但是由于泵浦脉冲和信号脉冲的脉冲宽度比较长, 脉冲宽度分别 640 fs 和 340 fs, 非线性转换效率较低, 导致最大输出功率仅为 1.5 μW。2013 年, A. Gambetta 等人利用脉冲宽度为 50 fs、中心波长为 1.55 μm 的掺铒光纤激光器作为泵浦脉冲, 利用孤子自频移所产生的信号光脉冲宽度为 84 fs, 平均功率为 100~250 mW, 波长在 1.76~1.93 μm 之间可调谐<sup>[42]</sup>。通过 GaSe 进行差频, 该课题组获得了在 8-14 μm 之间可调谐的长波中红外脉冲, 在 7.8 μm 处得到了 4 mW 的最高平均功率, 光子转换效率为 3.7%。2018 年, J. SOTOR 等人同样利用孤子自频移产生信号光脉冲, 但是故意将拉曼孤子的中心波长调节为 1930 nm 附近, 然后利用掺铒光纤进行放大, 之后在 OP-GaP 中与 1560 nm 的泵浦脉冲进行差频<sup>[43]</sup>。通过改变 OP-GaP 的极化周期以实现不同的准相位匹配条件, 该课题组产生了波长在 6~9 μm 范围内可调谐的长波中红外脉冲, 并且在 7.5 μm 处获得了 7.4 mW 的最大平均功率。2019 年, 该课题组通过对相似的系统进行频率锁定和中红外脉冲输出功率锁定, 获得了 10 h 内重复频率变化小于 3 Hz、

1 h 内功率变化小于 0.8% 的优异结果<sup>[44]</sup>。

根据笔者前面的理论介绍, 超快激光驱动源的中心波长越长越有利于产生长波中红外, 因此中心波长在 2 μm 附近的高功率掺铒光纤激光器极具潜力。2012 年, C. R. Phillips 等人利用平均功率为 430 mW、中心波长为 1.95 μm 的掺铒光纤激光器作为泵浦脉冲, 平均功率为 30 mW、中心波长为 2.5 μm 的拉曼孤子作为信号脉冲, 在准相位匹配晶体 OP-GaAs 中实现范围在 6.7~12.7 μm 可调谐的长波中红外输出, 其中最大输出功率为 1.3 mW<sup>[40]</sup>。

### 4.3 基于光谱旁瓣滤波获得信号光脉冲

基于光谱旁瓣滤波技术所产生的可调谐脉冲具有良好的能量可扩展性。理论和实验表明, 使用大模场面积光纤并且缩短光纤长度是提升脉冲能量的有效途径。在 2018 年的实验中, 笔者采用高功率飞秒掺铒光纤激光作为驱动源, 使用长度 4 cm、模场直径为 12.5 μm 的大模场光纤, 获得了波长在 1.1~1.2 μm 之间连续可调的信号光脉冲<sup>[17]</sup>。如图 11(a) 所示, 在 100 nm 的调谐范围内, 脉冲宽度在 105~140 fs 之间变化, 脉冲能量为 16~20 nJ。使用 2 mm 厚的 GaSe 晶体进行光学差频, 产生了波长范围在 7~18 μm 可调谐的

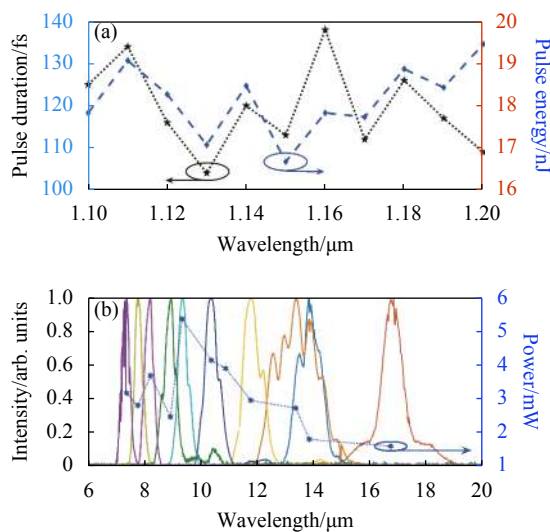


图 11 (a) 信号光脉冲在 1.1~1.2 μm 范围内所对应的能量 (蓝色曲线) 与脉冲宽度 (黑色曲线); (b) 2 mm GaSe 产生的中红外脉冲的光谱和平均功率

Fig. 11 (a) Measured pulse energy (blue dotted curve) and duration (black dotted curve) for the pulses resulting from the filtered spectral lobes at 1.1-1.2 μm. (b) Measured spectra and average power for mid-IR pulses generated in 2 mm GaSe



中红外脉冲输出,其中在  $9.5\ \mu\text{m}$  处得到  $5.4\ \text{mW}$  的最大输出功率,实验结果如图 11(b) 所示。

## 5 结论和展望

过去 10 年,伴随着高功率超快光纤激光和中红外晶体二者的快速发展,通过脉冲间差频获得长波中红外飞秒脉冲以及长波中红外频率梳正受到越来越多的关注。

目前,平均功率普遍偏低是制约长波中红外飞秒光源获得广泛应用的关键瓶颈。在实验中,测量结果的信噪比正比于中红外脉冲的平均功率,因此进一步提升其平均功率成为未来的主要发展方向。除了进一步发展能够产生高能量信号光脉冲的波长转换技术,利用波长更长的飞秒脉冲作为驱动源有望大幅度提升非线性转化效率。除了工作波长在  $2\ \mu\text{m}$  左右的掺铥或者掺钕飞秒光纤激光器外,工作波长在  $2.8\ \mu\text{m}$  的超快掺铒氟化物(ZBLAN)光纤激光更具潜力<sup>[45]</sup>。当然,提升中红外光源平均功率的另外一个关键是继续发展非氧化物非线性晶体,目标在于逐步实现更长的透射波长、更短的泵浦波长、高损伤阈值、高热导率以及能够利用非临界相位匹配等。每一个属性的完善都对长波中红外光源的改进起着重要的作用。目前可行的研究思路是通过掺杂或混合二元或三元非线性晶体以获得更复杂的三元或四元非线性晶体。例如,向 GaSe 中添加 S 不仅改善了热机械性能,还增加了带隙,从而有助于避免  $1.064\ \mu\text{m}$  泵浦时的双光子吸收。将 AGS(e) 或 HGS 化合物分别与同构但低双折射的 AgInS(e)<sub>2</sub> 或 CdGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> 晶体混合,可以在有效非线性系数最大时实现非临界相位匹配<sup>[12]</sup>。

限于篇幅,笔者在文中仅仅讨论了通过泵浦光脉冲和信号光脉冲的脉冲间差频获得长波中红外光源。近年来,科研人员也在努力发展基于脉冲内差频的长波中红外飞秒光源<sup>[18, 46-49]</sup>。与脉冲间差频需要两个飞秒脉冲不同,基于脉冲内差频的系统仅需要一个高能量飞秒脉冲,通过在中红外晶体中的光整流效应获得长波中红外脉冲。驱动脉冲越短,所产生的中红外光谱越宽而且中心波长越短。

总之,高功率光纤激光技术、非线性波长转换技术以及中红外晶体生长工艺都在不断提高,有理由乐观预测,在未来 10 年,长波中红外飞秒激光技术将快

速发展,并且会应用于很多科研和工业领域,产生重要成果。

## 参考文献:

- [1] Crowder J G, Smith S D, Vass A, et al. Infrared Methods for Gas Detection[M]//Krier A. Mid-Infrared Semiconductor Optoelectronics. [S. l.]: Springer, 2006: 595-613.
- [2] Cossel K C, Waxman E M, Finneran I A, et al. Gas-phase broadband spectroscopy using active sources: Progress, status, and applications [invited] [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2017, 34(1): 104-129.
- [3] Ilev I K, Waynant R W. Mid-infrared Biomedical Applications[M]//Krier A. Mid-Infrared Semiconductor Optoelectronics. [S. l.]: Springer, 2006: 615-634.
- [4] Walsh M J, Reddy R K, Bhargava R. Label-free biomedical imaging with mid-ir spectroscopy [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2012, 18(4): 1502-1513.
- [5] Pilling M, Gardner P. Fundamental developments in infrared spectroscopic imaging for biomedical applications [J]. *Chemical Society Reviews*, 2016, 45(7): 1935-1957.
- [6] Thorpe M J, Balslev-Clausen D, Kirchner M S, et al. Cavity-enhanced optical frequency comb spectroscopy: Application to human breath analysis [J]. *Optics Express*, 2008, 16(4): 2387-2397.
- [7] Pupeza I, Huber M, Trubetskov M, et al. Field-resolved infrared spectroscopy of biological systems [J]. *Nature*, 2020, 577(7788): 52-59.
- [8] Schliesser A, Picqué N, Hänsch T W. Mid-infrared frequency combs [J]. *Nature Photonics*, 2012, 6(7): 440-449.
- [9] Chang G, Wei Z. Ultrafast fiber lasers: An expanding versatile toolbox [J]. *iScience*, 2020, 23(5): 101101.
- [10] Biegert J, Bates P K, Chalus O. New mid-infrared light sources [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2012, 18(1): 531-540.
- [11] Swiderski J. High-power mid-infrared supercontinuum sources: Current status and future perspectives [J]. *Progress in Quantum Electronics*, 2014, 38(5): 189-235.
- [12] Petrov V. Frequency down-conversion of solid-state laser sources to the mid-infrared spectral range using non-oxide nonlinear crystals [J]. *Progress in Quantum Electronics*, 2015, 42: 1-106.
- [13] Pires H, Baudisch M, Sanchez D, et al. Ultrashort pulse generation in the mid-IR [J]. *Progress in Quantum Electronics*, 2015, 43: 1-30.

- [14] Vainio M, Halonen L. Mid-infrared optical parametric oscillators and frequency combs for molecular spectroscopy [J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2016, 18(6): 4266-4294.
- [15] Cao Q, Kärtner F X, Chang G. Towards high power longwave mid-ir frequency combs: Power scalability of high repetition-rate difference-frequency generation [J]. *Optics Express*, 2020, 28(2): 1369-1384.
- [16] Moses J, Huang S-W. Conformal profile theory for performance scaling of ultrabroadband optical parametric chirped pulse amplification [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2011, 28(4): 812-831.
- [17] Zhou G, Cao Q, Kärtner F X, et al. Energy scalable, offset-free ultrafast mid-infrared source harnessing self-phase-modulation-enabled spectral selection [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(12): 2953-2956.
- [18] Butler T P, Gerz D, Hofer C, et al. Watt-scale 50-mHz source of single-cycle waveform-stable pulses in the molecular fingerprint region [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(7): 1730-1733.
- [19] Ye J, Cundiff S T. Femtosecond Optical Frequency Comb: Principle, Operation, and Applications[M]. Boston, MA: Springer, 2005.
- [20] Diddams S A. The evolving optical frequency comb [invited] [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2010, 27(11): B51-B62.
- [21] Picqué N, Hänsch T W. Frequency comb spectroscopy [J]. *Nature Photonics*, 2019, 13(3): 146-157.
- [22] Liu W, Li C, Zhang Z, et al. Self-phase modulation enabled, wavelength-tunable ultrafast fiber laser sources: An energy scalable approach [J]. *Optics Express*, 2016, 24(14): 15328-15340.
- [23] Liu W, Chia S-H, Chung H-Y, et al. Energetic ultrafast fiber laser sources tunable in 1030–1215 nm for deep tissue multiphoton microscopy [J]. *Optics Express*, 2017, 25(6): 6822-6831.
- [24] Chung H Y, Liu W, Cao Q, et al. Er-fiber laser enabled, energy scalable femtosecond source tunable from 1.3 to 1.7 microm [J]. *Optics Express*, 2017, 25(14): 15760-15771.
- [25] Chung H-Y, Liu W, Cao Q, et al. Megawatt peak power tunable femtosecond source based on self-phase modulation enabled spectral selection [J]. *Optics Express*, 2018, 26(3): 3684-3695.
- [26] Chen R, Chang G. Pre-chirp managed self-phase modulation for efficient generation of wavelength-tunable energetic femtosecond pulses [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2020, 37(8): 2388-2397.
- [27] Zhou G, Xin M, Kaertner F X, et al. Timing jitter of raman solitons [J]. *Optics Letters*, 2015, 40(21): 5105-5108.
- [28] Hua Y, Zhou G, Liu W, et al. Femtosecond two-color source synchronized at 100-as-precision based on spm-enabled spectral selection [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(13): 3410-3413.
- [29] Kador L, Haarer D, Allakhverdiev K R, et al. Phase - matched second - harmonic generation at 789.5 nm in a gas crystal [J]. *Applied Physics Letters*, 1996, 69(6): 731-733.
- [30] Pupez I, Sánchez D, Pronin O, et al. Compact 0.1-W source of octave-spanning mid-infrared femtosecond pulses centered at 10  $\mu\text{m}$ [C]/CLEO, 2014.
- [31] Berger V. Nonlinear photonic crystals [J]. *Physical Review Letters*, 1998, 81: 4136-4139.
- [32] Al-Kadry A M, Strickland D. Generation of 400  $\mu\text{w}$  at 17.5  $\mu\text{m}$  using a two-color Yb fiber chirped pulse amplifier [J]. *Optics Letters*, 2011, 36(7): 1080-1082.
- [33] Yao Y, Knox W H. Difference frequency generation of femtosecond mid infrared pulses employing intense stokes pulses excitation in a photonic crystal fiber [J]. *Optics Express*, 2012, 20(23): 25275-25283.
- [34] Hajialamdari M, Strickland D. Tunable mid-infrared source from an ultrafast two-color Yb: Fiber chirped-pulse amplifier [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(17): 3570-3572.
- [35] Yao Y, Knox W H. Broadly tunable femtosecond mid-infrared source based on dual photonic crystal fibers [J]. *Optics Express*, 2013, 21(22): 26612-26619.
- [36] Sánchez D, Hemmer M, Baudisch M, et al. Broadband mid-IR frequency comb with CdSiP<sub>2</sub> and AgGaS<sub>2</sub> from an Er, Tm: Ho fiber laser [J]. *Optics Letters*, 2014, 39(24): 6883-6886.
- [37] Lee K F, Hensley C J, Schunemann P G, et al. Mid-infrared frequency comb by difference frequency of erbium and thulium fiber lasers in orientation-patterned gallium phosphide [J]. *Optics Express*, 2017, 25(15): 17411-17416.
- [38] Romero-Alvarez R, Pettus R, Wu Z, et al. Two-color fiber amplifier for short-pulse, mid-infrared generation [J]. *Optics Letters*, 2008, 33(10): 1065-1067.
- [39] Winters D G, Schlup P, Bartels R A. Subpicosecond fiber-based soliton-tuned mid-infrared source in the 9.7-14.9 microm wavelength region [J]. *Opt Lett*, 2010, 35(13): 2179-2181.
- [40] Phillips C R, Jiang J, Mohr C, et al. Widely tunable midinfrared difference frequency generation in orientation-patterned gas pumped with a femtosecond Tm-fiber system [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(14): 2928-2930.
- [41] Ruehl A, Gambetta A, Hartl I, et al. Widely-tunable mid-infrared frequency comb source based on difference frequency generation [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(12): 2232-2234.
- [42] Gambetta A, Coluccelli N, Cassinerio M, et al. Milliwatt-level

- frequency combs in the 8-14  $\mu\text{m}$  range via difference frequency generation from an Er: Fiber oscillator [J]. *Opt Lett*, 2013, 38(7): 1155-1157.
- [43] Sotor J, Martynkien T, Schunemann P G, et al. All-fiber mid-infrared source tunable from 6 to 9  $\mu\text{m}$  based on difference frequency generation in op-gap crystal [J]. *Opt Express*, 2018, 26(9): 11756-11763.
- [44] Krzempek K, Tomaszewska D, Gluszek A, et al. Stabilized all-fiber source for generation of tunable broadband FECO-free mid-IR frequency comb in the 7 – 9  $\mu\text{m}$  range [J]. *Optics Express*, 2019, 27(26): 37435-37445.
- [45] Huang J, Pang M, Jiang X, et al. Sub-two-cycle octave-spanning mid-infrared fiber laser [J]. *Optica*, 2020, 7(6): 574-579.
- [46] Zhang J, Fai Mak K, 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(2): 17180-17180.
- [47] Gaida C, Gebhardt M, Heuermann T, et al. Watt-scale super-octave mid-infrared intrapulse difference frequency generation [J]. *Light: Science & Applications*, 2018, 7(1): 94.
- [48] 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.
- [49] Wang Q, Zhang J, Kessel A, et al. Broadband mid-infrared coverage(2-17  $\mu\text{m}$ ) with few-cycle pulses via cascaded parametric processes [J]. *Opt Lett*, 2019, 44(10): 2566-2569.