

## 中红外超强超短激光研究进展 (特邀)

钱俊宇<sup>1,2</sup>, 彭宇杰<sup>1\*</sup>, 李妍妍<sup>1</sup>, 黎文开<sup>1</sup>, 冯壬誉<sup>1,2</sup>, 沈丽雅<sup>1,3</sup>, 冷雨欣<sup>1\*</sup>

- (1. 中国科学院上海光学精密机械研究所 强场激光物理国家重点实验室, 上海 201800;
2. 中国科学院大学 材料科学与光电技术学院, 北京 100049;
3. 上海科技大学 物质科学与技术学院, 上海 201210)

**摘要:** 近年来,可调谐中红外新波段超强超短激光的出现与迅速发展,开辟了强场物理领域中迄今仍很少探索过的参量空间,为开拓超强超短激光与物质相互作用的新物理、新效应及新应用提供了新机遇。文中总结了中红外超强超短激光近年来的发展趋势与研究方向。针对光参量放大、光参量啁啾脉冲放大、中红外脉冲后压缩以及中红外新型光场调控技术 4 个研究方向,较全面地分析各自的国内外研究现状,并对未来中红外超强超短激光的发展趋势进行了展望。

**关键词:** 中红外; 超强超短激光; 周期量级; 新型光场调控

**中图分类号:** O437 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20210456

## Research progress of mid-infrared ultra-intense and ultrashort laser (*Invited*)

Qian Junyu<sup>1,2</sup>, Peng Yujie<sup>1\*</sup>, Li Yanyan<sup>1</sup>, Li Wenkai<sup>1</sup>, Feng Renyu<sup>1,2</sup>, Shen Liya<sup>1,3</sup>, Leng Yuxin<sup>1\*</sup>

- (1. State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;
2. Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;
3. School of Physical Science and Technology, ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China)

**Abstract:** In recent years, the emergence and rapid development of tunable mid-infrared new-band ultra-intense ultrashort lasers have opened up a parametric space in the field of strong-field physics that has rarely been explored so far, providing new opportunities to explore new physics, new effects and new applications of ultra-intense ultrashort laser-matter interactions. The development trends and research directions of mid-infrared ultra-intense ultrashort lasers in recent years were summarized in this paper. The four research directions of optical parametric amplification, optical parametric chirp pulse amplification, mid-infrared pulse post-compression and new optical field modulation technology in mid-infrared were analyzed in a comprehensive manner, and the future development trend of mid-infrared ultra-intense ultrashort lasers was also prospected.

**Key words:** mid-infrared; ultra-intense ultrashort laser; few-cycle; new optical field modulation

收稿日期:2021-07-06; 修订日期:2021-07-26

基金项目:国家自然科学基金(61925507, 62075227);上海市优秀学术带头人计划(18XD1404200);上海市青年科技启明星计划(21QA1410200);中国科学院战略先导科技专项 B 类(XDB16030000)

作者简介:钱俊宇,男,博士生,主要从事中红外超强超短激光技术及应用方面的研究。

通讯作者:彭宇杰,男,副研究员,博士,主要从事重复频率超强超短激光技术、中红外超强超短激光技术及其应用方面的研究。

冷雨欣,男,研究员,博士,主要从事超强超短激光及重大应用方面的研究。

## 0 引言

超强超短激光技术的发展与应用研究是当前国际上激光技术的一个非常重要的科学前沿领域,它不仅推动了一批基础学科和前沿交叉学科的开拓和发展,也在诸如高亮度新波段相干光源、超高梯度高能粒子加速器、强场激光核医学、聚变能源、精密测量等战略高技术领域<sup>[1-6]</sup>的创新发展中起到不可替代的强大推动作用。

长期以来,由于超强超短激光增益介质(例如钛宝石等)辐射波段的限制,大多数的超强超短激光都局限于可见-近红外波段。而随着光学参量放大(Optical Parametric Amplification, OPA)技术<sup>[7]</sup>、光学参量啁啾脉冲放大(Optical Parametric Chirped Pulse Amplification, OPCPA)技术<sup>[8]</sup>和各类脉冲后压缩技术<sup>[9-12]</sup>的发展,中红外波段(1.5~5 μm)的超强超短激光得以迅速发展。凭借其长波长的特点,中红外的超强超短激光在强场科学、环境监测、生物医疗、通信、军事、工业等领域<sup>[13-16]</sup>有着独有的优势。尤其在强场物理领域,中红外激光作为驱动激光具有更长的波长,更高的有质动力势,可以用来驱动产生更高截止频率的高次谐波,产生具有更高能量和更短波长的紫外乃至 X 射线波段的光子<sup>[6]</sup>。

中红外激光脉冲的放大主要包含两种方式,其一是利用二阶非线性光参量过程进行放大,其二是通过掺稀土离子或过渡金属离子的晶体进行受激辐射放大。由于后者的放大过程很难产生飞秒的超短脉冲,因此,目前中红外超强超短激光的产生基本上都是基于非线性 OPA 的方法。首先,在中红外激光光源产生上,可通过近红外激光泵浦的 OPA 直接产生中红外波段的激光源,但 OPA 直接产生方法无法同时兼顾超强与超短两个需求,通常适用于微焦量级的飞秒中红外脉冲源产生。为了进一步提升脉冲能量,OPCPA 是目前最主流的技术方案,该方法结合了 OPA 过程与啁啾脉冲放大(Chirped Pulse Amplification, CPA),已实现几十毫焦、百飞秒以下的中红外超强超短激光产生。由于 OPA 与 OPCPA 相位匹配带宽等的限制,无法直接获得单光周期的激光,因此研究人员利用改进型的 OPA 及脉冲后压缩技术,实现了大能量、周期量级中红外激光的输出。

近年来,随着新型光场调控技术的兴起,具有轨道角动量的新型光场也受到了广泛的关注,如涡旋光、径向偏振光等<sup>[17-18]</sup>。相比于传统的高斯光束,由于涡旋光具有特殊的强度分布及轨道角动量,在多种科技领域都得到了广泛的应用,包括量子信息、光学捕获和操纵、超分辨显微镜、光通信和高次谐波产生<sup>[19-25]</sup>等。利用中红外超强超短涡旋激光驱动粒子束及次级辐射,将获得具有轨道角动量特性的高能粒子和辐射源,这在光学物理和材料表征等研究领域可以开辟全新的研究方向。

文中将系统地介绍中红外参量放大、中红外光啁啾参量脉冲放大、周期量级中红外脉冲产生,以及中红外超强超短激光新型光场调控技术的研究进展,并展望中红外超强超短激光的发展方向。

## 1 中红外光参量放大器

1961 年,Armstrong 等人首次提出 OPA 的概念<sup>[7]</sup>。OPA 利用非线性晶体(例如 BBO、KTA 等)作为增益介质,在相位匹配条件下,实现泵浦光脉冲  $\omega_p$ (强能量)的能量向信号光脉冲  $\omega_s$ (弱能量)转移的过程,同时得到一束闲频光  $\omega_i$ ,该过程是一种二阶非线性过程,原理如图 1 所示。基于白光超连续谱的 OPA 具有增益高、调谐光谱范围宽、载波包络相位(CEP)易控制和操作简单等优点,并且无需脉冲后压缩,可直接输出百飞秒以内的中红外脉冲。因此,OPA 是产生中红外脉冲的一种紧凑、稳定、高效的方法。

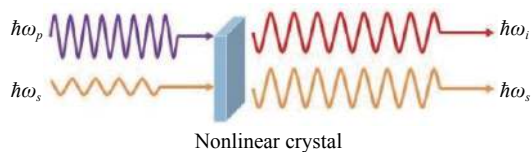


图 1 OPA 过程原理图

Fig.1 Schematic diagram of OPA

2007 年, D. Brida 等人<sup>[26]</sup>使用 LiIO<sub>3</sub> 晶体,通过 OPA 直接产生了在 3~4 μm 范围内可调谐的 2 μJ 脉冲,重复频率 1 kHz,其带宽支持 30 fs 的变换极限脉宽。Tobias Steinle 等人<sup>[27]</sup>设计了一个利用锥形光纤中光孤子作为种子源的 41.7 MHz 高重复频率的 OPA。该系统实现了 1.35~1.95 μm 以及 2.2~4.5 μm 的可调谐范围,脉冲持续时间在 200~300 fs,但脉

冲能量依旧很低。2008 年, Magnus W. Haakestad 等人<sup>[28]</sup>采用 ZnGeP<sub>2</sub> 晶体, 在 6 ns 脉冲泵浦的 OPA 中获得了 3~5 μm 高能中红外激光光源, 在 8 μm 处获得超过 8 mJ, 在 3~5 μm 处获得高达 33 mJ, 而其脉冲宽度较大, 在 ns 量级。同年, 日本 Riken 组的 Eiji J. Takahashi 等人<sup>[29]</sup>利用钛宝石激光器泵浦 BBO 晶体, 获得 7 mJ、40 fs 的 1.4 μm 的脉冲。到 2015 年, Nicolas Thiré 等人<sup>[30]</sup>同样通过钛宝石激光器泵浦 BBO, 在 1.8 μm 获得 10 mJ、30 fs 的脉冲输出。

2016 年, 中国科学院上海光学精密机械研究所 Yun Chen 等人<sup>[31]</sup>报道了一种高光束质量、宽带可调谐中红外飞秒激光脉冲产生的共线 OPA 系统。该系统由 800 nm 钛宝石激光放大器泵浦, 利用三级 KTA 晶体的 OPA 实现了 2.4~4.0 μm 的闲置脉冲可调

谐范围。3.27 μm 时能量可达 82 μJ, 最大能量转换效率可达 14.6%, 能量稳定性的 0.5 h 波动为 1.01% rms。如图 2 所示<sup>[31]</sup>, 闲置光光谱的调谐范围实现了 2.4~4.0 μm 的全覆盖, 并且在 3.86 μm 处, 光谱全宽达到 800 nm, 支持 70 fs 的傅里叶变换极限脉宽。由于出射的中红外脉冲是闲置光, 该出射脉冲的载波包络相位具有被动稳定的特点。

近年来, 利用 OPA 技术和新型非线性晶体, 研究人员已经将中红外波长往更长波的 5~10 μm 拓展<sup>[32-33]</sup>。但目前, 受限于非线性晶体的大小和损伤阈值, 飞秒 OPA 的最大能量一般限制在几 mJ, 脉宽在 50 fs, 要进一步提升脉冲能量, 需要使用 OPCPA 技术。

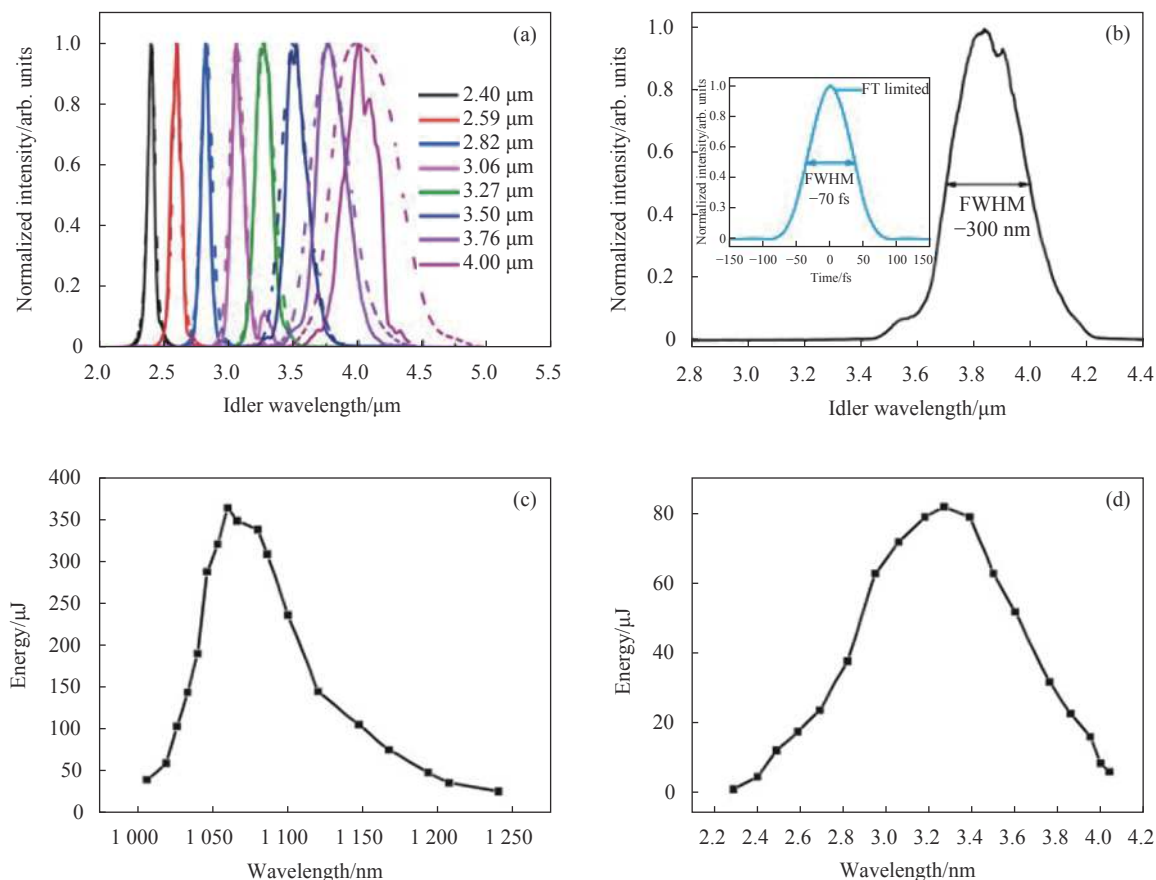


图 2 (a) 最终输出的中红外光谱, 实线为实测实验结果, 虚线对应于数值模拟的光谱; (b) 以 3.86 μm 为中心的实验结果; (c) 信号光能量随波长的变化; (d) 闲置光能量随波长的变化<sup>[31]</sup>

Fig.2 (a) The final output mid-infrared spectra. The solid lines are measured experimental results, the dash lines correspond the spectra from the numerical simulation; (b) Experimental results centered at 3.86 μm; (c) Signal energy versus wavelength; (d) Idler energy versus wavelength<sup>[31]</sup>

## 2 中红外光参量啁啾脉冲放大器

OPCPA 是将 OPA 与 CPA 技术两者相结合, 产生超强超短脉冲的一种新方法。1992 年, 立陶宛维尔纽斯大学的 A.Dubietis 等人<sup>[8]</sup>将 CPA 中基于增益介质的放大器替换为基于非线性过程的参量放大器, 首次提出 OPCPA 的思想, 并利用 BBO 晶体, 使得啁啾脉冲功率通过光参量放大提升了  $2 \times 10^4$ , 输出脉宽被压缩到 70 fs, 获得了 0.9 GW 的输出功率。图 3 即为 OPCPA 技术的基本原理图, OPCPA 具有高增益、宽带宽、高信噪比等特点, OPCPA 成为获得强场中红外超短脉冲的关键技术之一。随着大口径新型激光晶体的发展, 以及大能量皮秒泵浦激光系统的不断升级, 中红外超强超短激光也得到了迅速的发展。

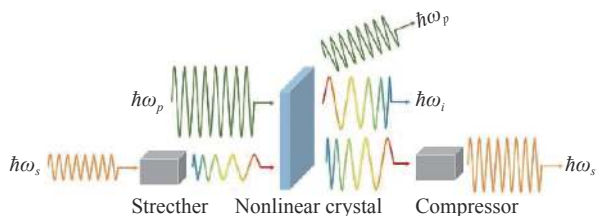


图 3 OPCPA 原理示意图

Fig.3 Schematic diagram of OPCPA

2011 年, 奥地利维也纳科技大学的 A.Baltuška 研究组<sup>[34]</sup>利用 250 mJ 的 1064 nm 皮秒脉冲泵浦两级 KTA 晶体, 在 3.9  $\mu\text{m}$  获得了 8 mJ、83 fs 的脉冲输出。随后, 该 OPCPA 系统在 2015 年进行了升级<sup>[35]</sup>, 将泵浦能量提升至 1 J, 获得了 35 mJ、80 fs, 对应 0.44 TW 峰值功率的超强超短中红外激光, 该系统也是目前报道的 3.9  $\mu\text{m}$  波段输出能量最高的 OPCPA 装置。

在国内的中红外超强超短激光研究方面, Pengfei Wang 等人<sup>[36]</sup>在 2018 年, 利用 OPCPA 技术获得了 5.5 mJ 的 4  $\mu\text{m}$  激光脉冲输出, 重复频率为 100 Hz, 脉冲宽度 105 fs。该方案首先利用 OPA 获得 4  $\mu\text{m}$  的种子脉冲, 随后信号光经 Öffner 展宽器时域展宽至 50 ps, 通过两块 10 mm 厚的 KTA 晶体放大, 在第二级获得了 11.8 mJ 的输出, 最后经双光栅对压缩器压缩, 获得了 5.5 mJ、105 fs 的能量输出, 对应 52 GW 的峰值功率。图 4(a) 显示了其第二级 KTA 放大能量随泵浦能量的线性增长关系, 并且可以看出信号能量还未达到饱和状态, 可进一步提升泵浦能量来提高脉冲输出能量。并且从图 4(b) 的输出光谱可以看出, 在放大过程

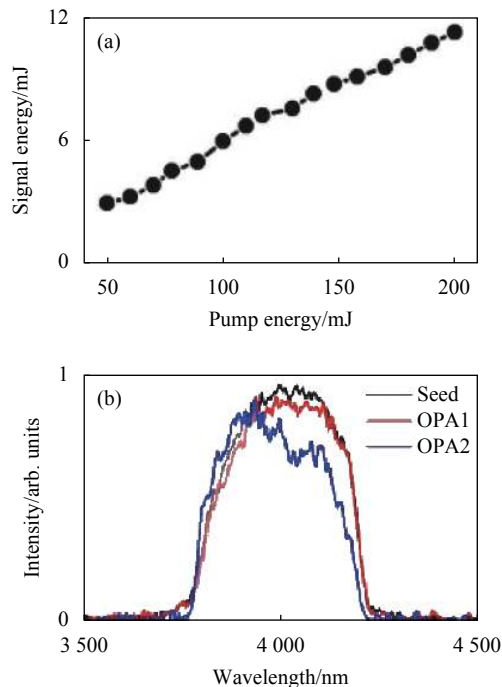


图 4 (a) 第二级 OPA 的信号脉冲能量与泵浦能量的关系; (b) 整个 OPCPA 系统的光谱演变<sup>[36]</sup>

Fig.4 (a) Amplified signal pulse energy of the second-stage OPA as a function of pump energy; (b) The spectrum evolution throughout the OPCPA system<sup>[36]</sup>

中光谱形状和宽度均得到了很好的保留。

到 2019 年, Pengfei Wang 等人<sup>[37]</sup>在 1.5  $\mu\text{m}$  波长实现了 26.5 mJ、60 fs 的脉冲输出, 对应 0.44 TW。

2015 年, 上海交通大学 Liejia Qian 课题组<sup>[38]</sup>在 OPCPA 的基础上提出一种准参量啁啾脉冲放大技术 (Quasi-parametric Chirped Pulse Amplification, QPCPA), 该方法利用  $\text{Sm}^{3+}$  掺杂的 YCOB 晶体, 通过材料损耗去除闲置光脉冲, 从而仅放大信号光, 因此可以有效地提高参量过程的转化效率。在高斯泵浦情况下, 实现了宽带啁啾脉冲的放大, 对应的泵浦光损耗为 70%, 信号光转化效率为 41%, 超过了之前报道的最先进的 OPA 的结果。该团队还在 2015 年设计了一套 2.2  $\mu\text{m}$  的基于  $\text{LiNbO}_3$  晶体的 100TW 超强超短 OPCPA 激光系统<sup>[39]</sup>, 如图 5 所示, 但该方案目前还未搭建完成。

OPCPA 具有高时间对比度、宽增益带宽、波长可调谐和低热效应等优点, 但是由于 OPCPA 过程中存在相位失配, 并且高阶色散难以补偿, 输出脉宽受限于数十飞秒。

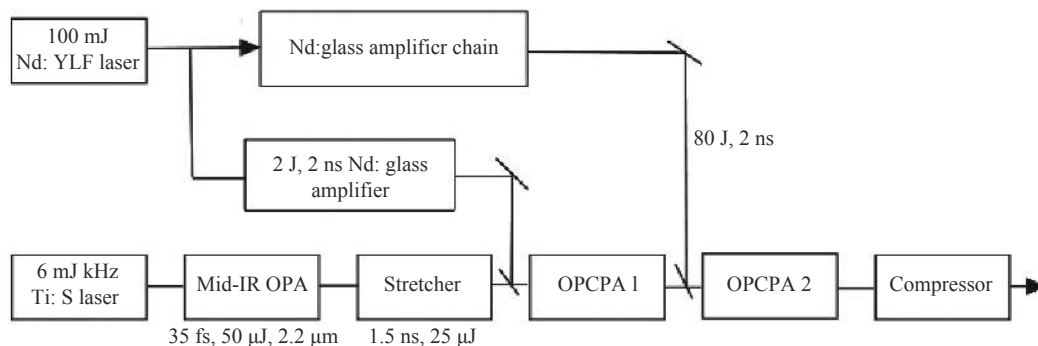


图 5 100 TW 中红外激光系统示意图<sup>[39]</sup>

Fig.5 Schematic of the 100-TW-level mid-infrared laser system<sup>[39]</sup>

### 3 中红外周期量级脉冲产生方案

#### 3.1 基于 OPA 的周期量级脉冲直接产生

为了获得周期量级的中红外超短脉冲,研究人员对 OPA 方案进行了多种改进,提出了多种基于 OPA 的周期量级脉冲直接产生的方法。2011 年,日本 Riken 研究组 Eiji J. Takahashi 等人提出了双啁啾光参量放大 (Dual-chirped Optical Parametric Amplification, DC-OPA) 技术<sup>[40]</sup>。该方法利用带啁啾的宽带泵浦光和信号光,通过精确控制两者相对啁啾与符号,实现了宽光谱闲置光的直接输出,并且能量转化效率也更高,最后经过精密的色散补偿,可以直接获得小于 2 个光周期的中红外脉冲。2018 年,该团队利用皮秒脉冲激光泵浦的 DC-OPA 技术,分别在 1~2 μm 获得了 100 mJ 量级的红外光束<sup>[41]</sup>和在 3.3 μm 获得了 30 mJ

量级的中红外光束<sup>[42]</sup>。

另一种直接产生周期量级中红外脉冲的方法是频率域 OPA(Frequency Domain OPA, FOPA)<sup>[43]</sup>,该技术是用一对光栅和一对凹面镜组成一个 4f 系统,在傅里叶平面内,肩并肩地放置一系列晶体,这些晶体的最佳相位匹配波长都不相同。这样,这一系列晶体的总的增益带宽是由每个晶体的增益带宽和晶体的数量综合决定的。因此,通过合理设计 FOPA 参数,可以直接获得宽带大能量的激光脉冲。而且,由于 OPA 过程发生在光栅对中,所以, FOPA 过程不需要额外的展宽器和压缩器。2017 年, V. Gruson 等人<sup>[44]</sup>在傅里叶平面内用 2 块 BBO 晶体通过 240 mJ 能量泵浦得到了 1.8 μm 波段 30 mJ、11.6 fs 的激光输出。表 1<sup>[41]</sup>列出了基于 OPA 产生的中红外飞秒激光的不同特性比较。

表 1 OPA、OPCPA、FOPA 和 DC-OPA 产生的中红外飞秒激光的特性<sup>[41]</sup>

Tab.1 Characteristics of OPA, OPCPA, FOPA, and DC-OPA for generating MIR femtosecond laser<sup>[41]</sup>

	OPA	FOPA	DC-OPA	OPCPA
Pump duration	Transform limit	Chirped	Chirped	Transform limit
Pump spectrum	Broad	Broad	Broad	Narrow
Seed duration	Transform limit	Transform limit	Chirped	Chirped
Seed spectrum	Broad	Broad	Broad	Broad
Synchronization	Automatic	Automatic	Automatic	Active stabilization
Energy scaling	Difficult	Possible	Easy	Easy
Output pulses	Signal and idler	Signal	Signal and idler	Signal and idler
Conversion efficiency	30%~40%	14%	30%~40%	10%~30%
Highest output energy	A few millijoules	Dozens of millijoules	Hundred millijoules	Hundred millijoules and above
Few-cycle pulse generation?	Yes	Yes	Yes	Yes
Preserve CEP stability of seed?	Yes	No	Possible	Possible
Wavelength tunability	Excellent	Not reported	Excellent	Good
Compressor	Not needed	Not needed	Most often but not always needed	Needed

### 3.2 基于脉冲后压缩的周期量级脉冲产生

目前,常见的脉冲后压缩方案主要为:充气空心光纤<sup>[9,45]</sup>、气体腔<sup>[11,46]</sup>、成丝<sup>[47-48]</sup>、块体材料<sup>[12]</sup>、多薄片级联<sup>[10]</sup>等方案,表 2 总结了这几种脉冲后压缩方法的不同特征。

充气空心光纤是目前最常用的脉冲后压缩方案,由于空心光纤内部充入了惰性气体,因此电离阈值远高于固体材料,可支持大能量的脉冲传输。另一方面,由于光纤长度非常长,可以大大延长脉冲与气体的作用长度,从而获得超宽带的超连续谱。通过控制空心光纤内的气体种类和气压,可以灵活控制非线性的大小。利用空心光纤的脉冲后压缩方案, Pengfei Wang 等人<sup>[36]</sup>将 OPCPA 获得的 5.5 mJ、4 μm 激光脉

冲进一步压缩至 21.5 fs,能量为 2.6 mJ。由于 4 μm 脉冲是 OPA 闲置光输出,因此其载波包络相位是被动稳定的,文章对其载波包络相位也进行了测量,为 370 mrad。

由于受到增益材料的尺寸以及系统光学元件的损伤阈值的影响,单路 OPCPA 输出功率的进一步提升受到了限制,需要发展峰值功率提升新方案,而其中一种方法就是多路激光相干合束方案。2021 年, Junyu Qian 等人<sup>[49]</sup>将两路 OPCPA 输出的大能量中红外飞秒激光同步注入充满氮气的空心光纤内,利用空心光纤相干合束压缩技术获得了 2.7 mJ、22.9 fs 的 4 μm 的中红外超强超短脉冲输出,实验装置如图 6 所示。同时,由于空心光纤的模式选择效应,这种方法有效

表 2 几种脉冲后压缩技术的特征比较

Tab.2 Characteristics comparison of several pulse post-compression techniques

	HCF	Gas-filled cell	Filament	Bulk material	Thin plates
System	Complexity	Complexity	Easy	Easy	General
Medium	Gas	Gas	Plasma	Solid	Solid
Spectrum broadening effect	SPM	SPM	SPM and high-order Kerr/plasma	SPM	SPM
Chirp compensation	Needed	Needed	Normal needed or self-compression	Normal needed or self-compression	Normal needed or self-compression
Maximum energy	mJ	mJ	mJ	mJ	mJ
Efficiency	60%	80%	80%	80%	80%
Compressed factor	2-10	2-10	2-10	2-10	2-10
Pulse duration	Single cycle	Single cycle	Single cycle	Single cycle	Single cycle
N <sub>2</sub> tunability?	Gas and pressure	Gas and pressure	Gas and pressure	No	No
Nonlinearity increasing?	Pressure and HCF length	Pressure and number of passed	Pressure	Bulk thickness	Plates number
Beam profile	Excellent	General	Excellent	General	General

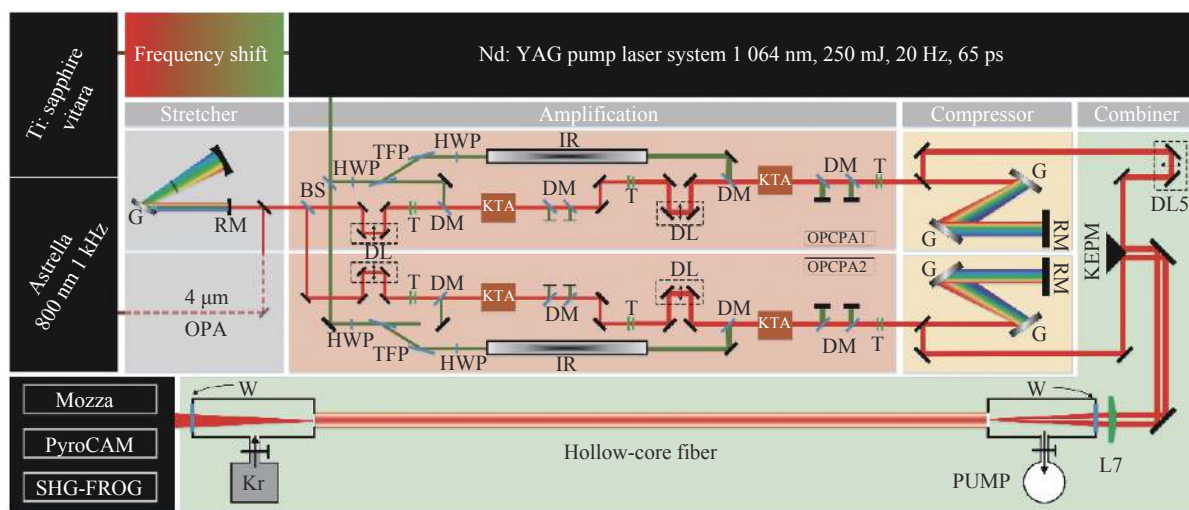


图 6 4 μm OPCPA 系统及空心光纤相干合束系统原理图<sup>[49]</sup>

Fig.6 Schematic of the 4 μm OPCPA system and the HCF-based coherent beam combination system<sup>[49]</sup>

解决了传统相干合束引起的光斑劣化, 获得了非常优质的高斯型光斑。该方法可以进一步扩展到 4 路以及更多路激光合束, 为超强超短激光峰值功率的进一步提升提供了一种有效手段。

Beijie Shao 等人, 将多薄片级联与非线性自压缩相结合, 提出了一种新型的周期量级中红外脉冲产生方法<sup>[50]</sup>, 在 1.9  $\mu\text{m}$  的中心波长下产生了 0.52 mJ、20 fs、

1 kHz 的脉冲直接输出, 能量稳定性为 0.7%(RMS)。该方法克服超强超短脉冲在材料内部自聚焦而对材料造成的损伤, 并且利用相应的材料负色散来精确补偿非线性正色散, 不需要任何额外的色散补偿元件, 可直接输出周期量级中红外脉冲。表 3 总结了目前不同波段下中红外超强超短激光的典型参数。截至 2018 年的中红外超强超短激光发展趋势如图 7 所示。

表 3 不同波段下中红外超强超短激光的典型参数<sup>[12, 32, 35, 37, 42, 44, 51-53]</sup>

Tab.3 Typical parameters of mid-infrared ultra-intense ultrashort lasers at different wavelengths<sup>[12, 32, 35, 37, 42, 44, 51-53]</sup>

Wavelength/ $\mu\text{m}$	1.5	1.8	2.2	3.3	3.9	5	10
OPA or OPCPA	OPCPA	FOPA	OPCPA	DCOPA	OPCPA	OPA	OPA
Crystal	KTA	BBO	BBO	MgO:LiNbO <sub>3</sub>	KTA	ZGP	BGS
Energy	26.5 mJ	30 mJ	250 $\mu\text{J}$	31 mJ	20 mJ	3.4 mJ	0.81 $\mu\text{J}$
Repetition frequency	100 Hz	10 Hz	100 kHz	10 Hz	20 Hz	1 kHz	100 kHz
Pulse width/fs	60	11.6	16.5	70	30	89.4	126
Post-compression	None	None	None	None	Bulk material	None	None

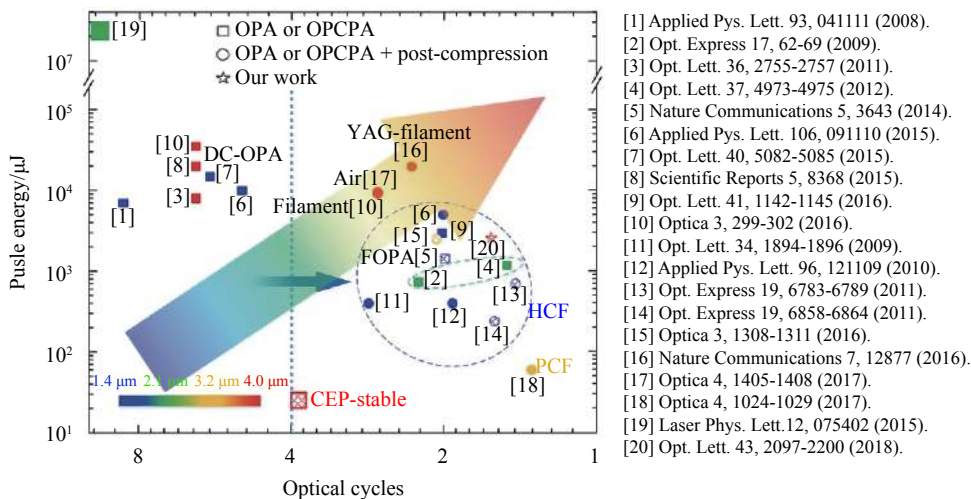


图 7 中红外超强超短激光发展趋势 (截至 2018 年)

Fig.7 Development trend of mid-infrared ultra-intense ultrashort lasers as of 2018

#### 4 中红外超强超短激光新型光场

近年来, 涡旋光因其环形的强度分布和携带轨道角动量而得到了广泛的关注与研究, 这种新光场可以被广泛应用于各个领域和研究, 如量子信息、光学捕获和操纵、超分辨率显微镜和高阶谐波产生等<sup>[19, 21-22, 25, 54]</sup>。尤其在强场激光领域, 大能量飞秒中红外涡旋激光可用驱动高次谐波产生, 产生带有轨道角动量的 KeV 光子, 以及其他二次辐射。

目前, 产生中红外超短超强涡旋光的方法主要是光参量振荡器 (Optical Parametric Oscillator, OPO) 和 OPA, 如 2011 年 Katsuhiko Miyamoto 等人<sup>[55]</sup>, 利用 1  $\mu\text{m}$  涡旋光泵浦的 OPO 系统, 在 2  $\mu\text{m}$  获得了 0.5 mJ 的涡旋光输出。而 2012 年, Keisaku Yamane 等人<sup>[56]</sup> 则利用 OPA 获得了飞秒涡旋光的输出。

对于大能量中红外超强超短涡旋光而言, OPO 和 OPA 均无法完全支持, 而 OPCPA 是产生大能量涡旋光的切实可行的一种方法。2020 年, Junyu Qian 等

人<sup>[57]</sup>通过特殊设计的相位调控元件获得涡旋种子激光,相继经过高增益光学参量放大和精密色散控制后,获得了脉冲能量达 10 mJ、脉冲宽度百飞秒量级的中红外涡旋激光。研究人员还进一步验证了输出激光的拓扑荷数,证实了该方法对于涡旋特性的高保真度。

由于 OPA 晶体是双折射的,所需的相位匹配条件只能满足具有固定线性偏振组合的相互作用波,而信号光偏振的任何变化都会导致巨大的相位失配,从而显著降低 OPA 的增益。因此,对于径向偏振光而言,通过光参量的方法获得大能量径向偏振脉冲存在一定的难度。Haizhe Zhong 等人<sup>[58]</sup>近期提出了一种特殊设计的 OPA 方案,该方案利用简并 OPA 过程,使得两个正交极化的信号  $o$  光和  $e$  光能同时满足相同的 II 类相位匹配条件 ( $e \rightarrow o+e$ ) 并被同步放大,最终在 1.6  $\mu\text{m}$  处获得了飞秒径向偏振光的 OPA 直接输出。

## 5 总结与展望

文中总结了中红外超强超短脉冲的主要技术方案,针对 OPA、OPCPA、周期量级中红外脉冲产生与中红外新型光场调控技术的研究进展进行了讨论。随着超强超短激光技术的不断发展,激光脉冲峰值强度不断攀升,中红外的超强超短激光也迎来了新的发展机遇与挑战。目前,中红外超强超短激光脉冲的峰值功率还未突破 TW 量级,其中一个重要的因素是非线性晶体尺寸的限制,中红外脉冲的能量提升还远未达到如 800、1064 nm 等波长的水平。并且,由于在中红外波段的测量反馈方法和设备较少,对中红外超强超短脉冲的各参数测量,尤其是对周期量级中红外脉冲宽度的直接、简单测量的方案还有非常大的发展空间。从近些年来中红外激光的发展趋势看,中红外激光脉冲主要向着更高的能量、更长的波长、更短的脉冲宽度以及更高的重复频率方向发展。

在更长波长的中红外激光技术方面。利用新型激光晶体 OPA 和 OPCPA,如 BGSe 等,可将激光波长往 5~10  $\mu\text{m}$ ,乃至远红外波段拓展,但波长越长,脉冲能量的转化效率也越低,如何实现更长波长的红外激光高效产生是目前面临的挑战之一。

在发展高平均功率中红外激光技术方面。可基于高平均功率的皮秒泵浦源,利用基于空心光纤的脉

冲后压缩系统,实现高重频、高平均功率、周期量级脉冲宽度的中红外激光脉冲输出。例如,可利用高平均功率(200 W)的皮秒泵浦源以及 HCF 的脉冲后压缩系统,实现平均功率为 20 W,脉宽为 20 fs 左右,且重复频率为 100 kHz 的中红外激光脉冲输出。

在高单脉冲峰值功率激光技术方面。目前,实现大能量中红外脉冲输出的最可靠的方案依旧是 OPCPA 技术,因此,利用大口径的中红外非线性晶体以及大能量纳秒泵浦源,例如通过三级 OPA 放大,20 J 纳秒激光器泵浦的 OPCPA 系统,未来有望实现峰值功率为 10 TW 百飞秒量级脉宽的中红外激光脉冲输出。甚至,上海交通大学 Liejia Qian 课题组还提出了基于 LiNbO<sub>3</sub> 晶体的 100 TW 超强超短 OPCPA 激光系统<sup>[39]</sup>。目前,基于 HCF 的脉冲后压缩方法由于受到自聚焦效应的限制,无法将其应用于更高峰值功率(比如说数十至百太瓦量级)的脉冲压缩。因此,发展新型脉冲后压缩方案,如梯度气压的空心光纤压缩、多通腔压缩、薄片级联的光谱展宽并压缩,或利用大能量、多波段激光脉冲的相干合成等技术,实现百太瓦量级单周期脉宽的中红外激光系统也是未来的一个重点研究方向。

## 参考文献:

- [1] Baer T M, Bigelow N P. 2020 visions (lasers) [J]. *Nature*, 2010, 463(7277): 26-32.
- [2] Ke L T, Feng K, Wang W T, et al. Near-GeV electron beams at a few per-mille level from a laser wakefield accelerator via density-tailored plasma [J]. *Physical Review Letters*, 2021, 126(21): 214801.
- [3] Kodama R, Norreys P A, Mima K, et al. Fast heating of ultrahigh-density plasma as a step towards laser fusion ignition [J]. *Nature*, 2001, 412(6849): 798-802.
- [4] Zhong J, Li Y, Wang X, et al. Modelling loop-top X-ray source and reconnection outflows in solar flares with intense lasers [J]. *Nature Physics*, 2010, 6(12): 984-987.
- [5] Xu T, Shen B, Xu J, et al. Ultrashort megaelectronvolt positron beam generation based on laser-accelerated electrons [J]. *Physics of Plasmas*, 2016, 23(3): 033109.
- [6] 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(6086): 1287-1291.



- [7] Armstrong J A, Bloembergen N, Ducuing J, et al. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric [J]. *Physical Review*, 1962, 127(6): 1918-1939.
- [8] Dubietis A, Jonusauskas G, Piskarskas A. Powerful femtosecond pulse generation by chirped and stretched pulse parametric amplification in BBO crystal [J]. *Optics Communications*, 1992, 88(4-6): 437-440.
- [9] Fan G, Balciunas T, Kanai T, et al. Hollow-core-waveguide compression of multi-millijoule CEP-stable 32  $\mu\text{m}$  pulses [J]. *Optica*, 2016, 3(12): 1308-1311.
- [10] Lu C H, Tsou Y J, Chen H Y, et al. Generation of intense supercontinuum in condensed media [J]. *Optica*, 2014, 1(6): 400-406.
- [11] Ueffing M, Reiger S, Kaumanns M, et al. Nonlinear pulse compression in a gas-filled multipass cell [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(9): 2070-2073.
- [12] Shumakova V, Malevich P, Alisaukas S, et al. Multi-millijoule few-cycle mid-infrared pulses through nonlinear self-compression in bulk [J]. *Nature Communications*, 2016, 7: 12877.
- [13] Ebrahim-zadeh M, Sorokina I T. Mid-infrared Coherent Sources and Applications[M]. [S. l.]: Springer, 2008.
- [14] Dai Y F, Li Y Y, Zou X, et al. High-efficiency broadly tunable Cr: ZnSe single crystal laser pumped by Tm: YLF laser [J]. *Laser Physics Letters*, 2013, 10(10): 105816.
- [15] Sorokina I T. Cr<sup>2+</sup>-doped II-VI materials for lasers and nonlinear optics [J]. *Optical Materials*, 2004, 26(4): 395-412.
- [16] Yakovlev V S, Ivanov M, Krausz F. Enhanced phase-matching for generation of soft X-ray harmonics and attosecond pulses in atomic gases [J]. *Optics Express*, 2007, 15(23): 15351-15364.
- [17] Allen L, Beijersbergen M W, Spreeuw R J, et al. Orbital angular momentum of light and the transformation of Laguerre-Gaussian laser modes [J]. *Physical Review A*, 1992, 45(11): 8185-8189.
- [18] Soskin M S, Vasnetsov M V. Singular optics [J]. *Progress in Optics*, 2001, 42(4): 219-276.
- [19] Inoue R, Yonehara T, Miyamoto Y, et al. Measuring qutrit-qutrit entanglement of orbital angular momentum states of an atomic ensemble and a photon [J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(11): 110503.
- [20] Mair A, Vaziri A, Weihs G, et al. Entanglement of the orbital angular momentum states of photons [J]. *Nature*, 2001, 412(6844): 313-316.
- [21] Yao A M, Padgett M J. Orbital angular momentum: origins, behavior and applications [J]. *Advances in Optics and Photonics*, 2011, 3(2): 161-204.
- [22] Bretschneider S, Eggeling C, Hell S W. Breaking the diffraction barrier in fluorescence microscopy by optical shelving [J]. *Physical Review Letters*, 2007, 98(21): 218103.
- [23] Yan Y, Xie G, Lavery M P, et al. High-capacity millimetre-wave communications with orbital angular momentum multiplexing [J]. *Nature Communications*, 2014, 5: 4876.
- [24] Hernandez-garcia C, Picon A, San Roman J, et al. Attosecond extreme ultraviolet vortices from high-order harmonic generation [J]. *Physical Review Letters*, 2013, 111(8): 083602.
- [25] Rego L, Dorney K M, Brooks N J, et al. Generation of extreme-ultraviolet beams with time-varying orbital angular momentum [J]. *Science*, 2019, 364(6447): eaaw9486.
- [26] Brida D, Manzoni C, Cirmi G, et al. Generation of broadband mid-infrared pulses from an optical parametric amplifier [J]. *Optics Express*, 2007, 15(23): 15035-15040.
- [27] Steinle T, Stenmann A, Hegenbarth R, et al. Watt-level optical parametric amplifier at 42 MHz tunable from 1.35 to 4.5  $\mu\text{m}$  coherently seeded with solitons [J]. *Optics Express*, 2014, 22(8): 9567-9673.
- [28] Haakestad M W, Arisholm G, Lippert E, et al. High-pulse-energy mid-infrared laser source based on optical parametric amplification in ZnGeP<sub>2</sub> [J]. *Optics Express*, 2008, 16(18): 14263-14273.
- [29] Takahashi E J, Kanai T, Nabekawa Y, et al. 10mJ class femtosecond optical parametric amplifier for generating soft x-ray harmonics [J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 93(4): 041111.
- [30] Thiré N, Beaulieu S, Cardin V, et al. 10 mJ 5-cycle pulses at 1.8  $\mu\text{m}$  through optical parametric amplification [J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 106(9): 091110.
- [31] Chen Y, Li Y Y, Li W K, et al. Generation of high beam quality, high-energy and broadband tunable mid-infrared pulse from a KTA optical parametric amplifier [J]. *Optics Communications*, 2016, 365: 7-13.
- [32] Heiner Z, Petrov V, Mero M. Efficient, sub-4-cycle, 1-microm-pumped optical parametric amplifier at 10 microm based on BaGa<sub>4</sub>S<sub>7</sub> [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(20): 5692-5695.
- [33] Cheng S, Chatterjee G, Tellkamp F, et al. Compact Ho: YLF-pumped ZnGeP<sub>2</sub>-based optical parametric amplifiers tunable in the molecular fingerprint regime [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(8): 2255-2258.
- [34] Andriukaitis G, Balciunas T, Allisaukas S, et al. 90 GW peak power few-cycle mid-infrared pulses from an optical parametric amplifier [J]. *Optics Letters*, 2011, 36(15): 2755-2757.
- [35] Mitrofanov A V, Voronin A A, Sidorov-biryukov D A, et al. Mid-infrared laser filaments in the atmosphere [J]. *Scientific*

- Reports*, 2015, 5(1): 8368.
- [36] Wang P F, Li Y Y, Li W K, et al. 2.6 mJ/100 Hz CEP-stable near-single-cycle 4  $\mu\text{m}$  laser based on OPCPA and hollow-core fiber compression [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(9): 2197-2200.
- [37] Wang P F, Shao B J, Su H P, et al. High-repetition-rate, high-peak-power 1450 nm laser source based on optical parametric chirped pulse amplification [J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2019, 7: e32.
- [38] Ma J, Wang J, Yuan P, et al. Quasi-parametric amplification of chirped pulses based on a  $\text{Sm}^{3+}$ -doped yttrium calcium oxyborate crystal [J]. *Optica*, 2015, 2(11): 1006-1009.
- [39] Wand F, Xie G, Yuan P, et al. Theoretical design of 100-terawatt-level mid-infrared laser [J]. *Laser Physics Letters*, 2015, 12(7): 075402.
- [40] Zhang Q, Takahashi E J, Mucke O D, et al. Dual-chirped optical parametric amplification for generating few hundred mJ infrared pulses [J]. *Optics Express*, 2011, 19(8): 7190-7212.
- [41] Fu Y, Midorikawa K, Takahashi E J. Towards a petawatt-class few-cycle infrared laser system via dual-chirped optical parametric amplification [J]. *Scientific Reports*, 2018, 8(1): 7692.
- [42] Fu Y, Xue B, Midorikawa K, et al. TW-scale mid-infrared pulses near 3.3  $\mu\text{m}$  directly generated by dual-chirped optical parametric amplification [J]. *Applied Physics Letters*, 2018, 112(24): 241105.
- [43] Schmidt B E, Thire N, Boivin M, et al. Frequency domain optical parametric amplification [J]. *Nature Communications*, 2014, 5: 3643.
- [44] Gruson V, Ernotte G, Lassonde P, et al. 2.5 TW, two-cycle IR laser pulses via frequency domain optical parametric amplification [J]. *Optics Express*, 2017, 25(22): 27706-27014.
- [45] Schmidt B E, Béjot P, Giguère M, et al. Compression of 1.8  $\mu\text{m}$  laser pulses to sub two optical cycles with bulk material [J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 96(12): 121109.
- [46] Lavenu L, Natile M, Guichard F, et al. Nonlinear pulse compression based on a gas-filled multipass cell [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(10): 2252-2255.
- [47] Shumakova V, Alisauskas S, Malevich P, et al. Chirp-controlled filamentation and formation of light bullets in the mid-IR [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(9): 2173-2176.
- [48] Mitrofanov A V, Voronin A A, Sidorov-Biryukov D A, et al. Subterawatt few-cycle mid-infrared pulses from a single filament [J]. *Optica*, 2016, 3(3): 299-302.
- [49] Qian J, Wang P, Peng Y, et al. Pulse combination and compression in hollow-core fiber for few-cycle intense mid-infrared laser generation [J]. *Photonics Research*, 2021, 9(4): 477-483.
- [50] Shao B, Li Y, Peng Y, et al. 1.9  $\mu\text{m}$  few-cycle pulses based on multi-thin-plate spectral broadening and nonlinear self-compression [J]. *IEEE Photonics Journal*, 2021, 13(3): 1-8.
- [51] Von Grafenstein L, Bock M, Ueberschaer D, et al. Multi-millijoule, few-cycle 5 microm OPCPA at 1 kHz repetition rate [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(21): 5998-6001.
- [52] Pupekis J, Chevreuil P A, Bigler N, et al. Water window soft X-ray source enabled by a 25 W few-cycle 22  $\mu\text{m}$  OPCPA at 100 kHz [J]. *Optica*, 2020, 7(2): 168-171.
- [53] Cardin V, Thiré N, Beaulieu S, et al. 0.42 TW 2-cycle pulses at 1.8  $\mu\text{m}$  via hollow-core fiber compression [J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 107(18): 181101.
- [54] Gauthier D, Ribic P R, Adhikary G, et al. Tunable orbital angular momentum in high-harmonic generation [J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 14971.
- [55] Miyamoto K, Miyagi S, Yamada M, et al. Optical vortex pumped mid-infrared optical parametric oscillator [J]. *Optics Express*, 2011, 19(13): 12220-12226.
- [56] Yamane K, Toda Y, Morita R. Ultrashort optical-vortex pulse generation in few-cycle regime [J]. *Optics Express*, 2012, 20(17): 18986-18993.
- [57] Qian J, Peng Y, Li Y, et al. Femtosecond mid-IR optical vortex laser based on optical parametric chirped pulse amplification [J]. *Photonics Research*, 2020, 8(3): 421-425.
- [58] Zhong H, Liang C, Dai S, et al. Polarization-insensitive, high-gain parametric amplification of radially polarized femtosecond pulses [J]. *Optica*, 2021, 8(1): 62-69.