

差频产生中红外飞秒激光脉冲的研究进展*

吴晓丽¹ 韩海年^{2,†} 王薇^{1,3} 魏志义²

(1 首都师范大学物理系 北京 100037)

(2 中国科学院物理研究所光物理重点实验室 北京 100190)

(3 中国科学院国家天文台 北京 100012)

摘要 中红外飞秒激光脉冲在科研、民用及军事等方面都有重要的应用,文章回顾了产生中红外飞秒激光脉冲的几种方法,结合差频法产生中红外飞秒脉冲的优点,详细介绍了差频产生中红外飞秒激光脉冲的研究进展,最后进行了总结和展望。

关键词 差频,中红外,飞秒激光脉冲

Progress in mid-infrared femtosecond pulse generation with difference frequency techniques

WU Xiao-Li¹ HAN Hai-Nian^{2,†} Wang Wei^{1,3} WEI Zhi-Yi²

(1 Department of Physics, Capital Normal University, Beijing 100037, China)

(2 Key Laboratory of Optical Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

(3 National Astronomical Observatories, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100012, China)

Abstract Femtosecond pulsed lasers in the mid-infrared spectral range have wide applications in basic research and civil and military areas. Several methods to generate mid-infrared femtosecond pulses are reviewed. In view of the advantages of the difference frequency technique, we describe its development and present a summary of perspectives for future research.

Keywords difference frequency generation, mid-infrared, femtosecond pulsed laser

1 引言

中红外位于 3.0—20 μm 的光谱波长范围,其中 3—5 μm 中红外激光在大气中传输时损耗很小,对大雾、烟尘等具有较强的穿透力,形成了一个大气传输窗口,在军事中有潜在的应用。有鉴于此,对这一波段的研究一直是光学领域的重要分支。脉宽在皮秒甚至飞秒量级的中红外超短脉冲可实现大容量、高速远程通信、环境监测、激光医疗、食品检验等众多用途,是研究窄能隙半导体和超晶格多量子阱带间瞬态跃迁过程、半导体内光激发动力学、以及分子内和分子间的能量转移和解相现象等动力学问题的重要手段^[1]。此外,红外制导导弹和红外预警系统等的探测器都对该波段敏感,而中红外超短脉冲

激光可以在瞬间提供很高的峰值功率,足以损伤这些探测器件,因此,具有高功率的中红外超短脉冲激光将是未来军事对抗中的杀手锏之一^[2]。

在可见和近红外波段,获得超短脉冲激光通常都采用谐振腔锁模技术,但是由于缺乏合适的激光增益介质,这种技术很难直接应用到中红外区。超短中红外激光脉冲的产生主要是利用了非线性频率转换技术,将可见的超短脉冲频率下转换到中红外区,如光学参量振荡(OPO)、光学参量放大(OPA)、四波混频(FWM)、差频产生(DFG)等。但参量振荡法

* 国家自然科学基金(批准号:60490281,60578027,60608003,10573024)资助项目
2008-09-03 收到

† 通讯联系人。Email: hnhan@aphy.iphy.ac.cn

需要谐振腔的精确匹配,并且对输入光及非线性晶体的要求较高,参量放大要求抽运光能量很高,且受晶体材料透光范围限制,输出光调谐范围相对较小.四波混频属于三阶非线性,效率较低.相比之下,差频法具有单通实验结构无需复杂腔型调整、输出激光调谐范围宽、效率较高等综合优点,因而受到了研究者的青睐.

2 非线性差频晶体的选择

光的非线性行为是光通过介质传播时介质材料

表 1 几种红外非线性光学晶体的性能参数比较^[3-5]

晶体	非线性系数/(pm/V)	透光范围/(μm)	热导率/(W/m · k)	损伤阈值/(MW/cm ²)
AgGaS ₂	$d_{33} = 31$	0.47—13	1.5	10—20(10.6 μm ,150ns)
AgGaSe ₂	$d_{36} = 33$	0.71—18	1.1	10—20(10.6 μm ,150ns)
ZnGeP ₂	$d_{36} = 75$	0.75—12	18	60(10.6 μm ,150ns)
CdGeAs ₂	236	2.3—18	4	
LiInS ₂	$d_{32} = 15.8$	0.35—13	7.6	>1000(1.064 μm ,10ns)
GaSe	$d_{22} = 54$	0.62—18		30(1.064 μm ,10ns)
CdSe	$d_{15} = 18$	0.75—20		

其中 AgGaS₂ ,ZnGeP₂ ,CdGeAs₂ ,AgGaSe₂ 属于黄铜矿结构化合物,这类晶体的突出优点是非线性系数大且中远红外透过性高.但同时它们有以下缺点:热膨胀的各向异性大,热导率低,晶体长大困难,本征缺陷引起吸收和散射,影响了在红外区的透过率.不过令人欣慰的是,这些不足在近几年已经有了很大的改善,未来此类晶体有望应用到高功率中红外激光器件构成的系统中.纤锌矿结构晶体 LiInS₂ 由于其优良的热学性能和非线性光学性质,早期就被关注研究,但因没获得高质量的晶体,一直没有得到很好应用,目前仍为研究热点. GaSe 和 CdSe 具有更宽的透光范围和较大的有效非线性系数,其中 GaSe 晶体支持 I 类及 II 类位相匹配,所以我们只需将晶体绕寻常轴转动 30 度,就可以改变位相匹配类型,无须改变入射光的偏振态.但 GaSe 也存在它本身的劣势,如只可以沿 z 轴切割,且质地软等. CdSe 相比 GaSe 透明范围更宽些,但它非线性系数小,转换效率相应也比较低.

以上晶体利用的是双折射位相匹配技术,此方法受到波矢方向和偏振方向的限制,使得只能在特定的晶体上实现固定波长的相位匹配,使用受到极大限制.另一种获得高效非线性频率变换的相位匹配技术是准相位匹配(QPM)技术.即利用非线性极化率的周期跃变可以实现非线性光学频率变换效率

的功能而不是光本身的功能,光频变化的性质由光和介质的相互作用决定,所以选择非线性光学晶体非常重要.通常需要考虑的参数包括晶体非线性系数、透光范围、损伤阈值、导热性等等.差频实验常用到的中红外非线性晶体有 AgGaS₂、AgGaSe₂、Cd-GeAs₂、GaSe、CdSe 等,这些晶体在性质上各有优缺点,它们的基本性能参数如表 1 所示.

的增强.它具有以下几个优点:(1)通过周期性极化结构可获得有效的能量转换,理论上能够利用晶体的整个透光范围.(2)不存在走离效应,降低了对入射光发散角的要求.同时,可以使用较长的晶体,获得较大增益和转换效率.(3)由于 QPM 过程不再要求正交光束,可充分利用非线性晶体的最大有效非线性系数,使得非线性效应得以显著提高.(4)通过选择适当的极化周期能够在任何工作点实现非临界相位匹配.(5)调谐方式多,如温度调谐、角度调谐、抽运波长调谐等. QPM 技术拓宽了非线性晶体的应用范围,大大提高了非线性光学转换效率.目前常见的 QPM 材料主要有 PPKTP, PPLN, PPKTA, PPRTA 等.其中 PPLN 由于具有优良的光电特性,加之商品化程度很高,是差频产生中红外脉冲常用的周期性极化晶体.

3 差频产生中红外飞秒脉冲的几种方法

1965 年 Zernike 和 Berman 首次用差频方法得到了远红外辐射^[6]. 20 世纪 80 年代,人们使用染料激光器为抽运源得到短至 2ps、能量为几个微焦、调谐范围在 4—10 μm 之间的红外输出. 20 世纪 90 年代后,随着自锁模掺钛蓝宝石激光器的出现,人们主要以钛宝石激光器或钛宝石再生放大器为抽运源,

可得到几百至几十飞秒的中红外激光脉冲. 下面对 90 年代后利用差频产生中红外超短脉冲技术进行总结, 并对进一步的发展做出展望.

3.1 超连续飞秒脉冲激光直接差频技术

利用超连续宽谱飞秒脉冲中的低频成分和高频成分直接差频是最简单的方法. 这种方法只需要一束飞秒脉冲聚焦耦合到一块非线性晶体中, 就可差频产生红外辐射. 覆盖的波长范围由超连续的谱宽决定. 1998 年, R. A. Kaindl 等人^[7]将钛宝石振荡器输出的 88MHz, 20fs 的飞秒脉冲分别注入到 GaSe 晶体和 GaAs 晶体中, 得到了调谐范围为 9—18 μm , 脉宽 140fs 的中红外激光输出. 并且证明了 GaSe 晶体相位匹配得到的中红外飞秒脉冲的能量是 GaAs 晶体非相位匹配光学整理的 100 倍. 2001 年, J. P. Liforman 等人^[8]采用钛宝石再生放大并经空心光纤压缩后的飞秒脉冲, 其重复频率为 310Hz, 脉宽 15fs, 单脉冲能量 140 μJ , 将这束超连续飞秒脉冲分别注入 GaSe 晶体和 GaAs 晶体中, 产生了 6—14 μm 的中红外脉冲, 图 1 为所得红外脉冲的光谱图.

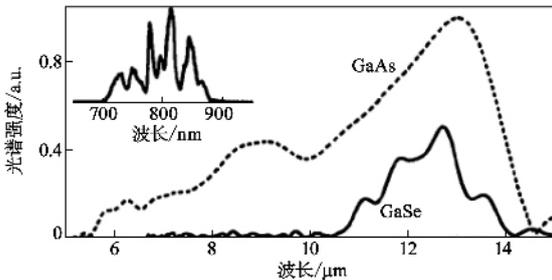


图 1 15fs, 310Hz 放大飞秒脉冲差频产生的中红外光谱图. 插入图为入射可见飞秒激光脉冲光谱图

随着啁啾镜色散补偿技术及光纤展宽再压缩等技术的利用, 已经能够从钛宝石振荡器或放大器中直接产生 10fs 以下周期量级并具有超宽光谱的飞秒激光脉冲. 结合飞秒频率梳技术进行载波包络相位锁定后, 这种相位稳定的飞秒脉冲是进行阿秒脉冲、强场物理等科学研究的有力工具. 但是美中不足的一点是, 钛宝石直接输出的飞秒脉冲中心波长在 800nm 左右, 而阿秒产生需要中心波长偏红外的激光, 如 2—5 μm 更理想. 本研究小组最近分别利用自建的 5fs、160MHz 钛宝石飞秒振荡器和 1kHz 放大器^[9,10]通过在准相位匹配 PPLN 晶体中直接差频同一束周期量级超宽谱飞秒脉冲中不同的光谱成分, 产生了 2—5 μm 宽谱的中红外飞秒激光, 并且因为差频的抵消作用, 产生的中红外飞秒激光脉冲的

载波包络相位为 0. 图 2 为实验装置图, 其中 1 为滤波系统, 2, 3, 4 为啁啾镜和尖劈组成的色散补偿系统, 5, 6 为聚焦凹面银镜, 7 为 PPLN 晶体, 8 为红外滤光片. 相比文献^[7, 8]的实验装置, 本研究小组在色散补偿、聚焦方式、晶体参数等方面做了改进, 进而得到了载波包络相位自稳定的中红外飞秒脉冲输出, 图 3 为测得的光谱曲线. 这样的载波包络相位自稳定的中红外飞秒脉冲源经放大后可作为阿秒产生理想的驱动源.

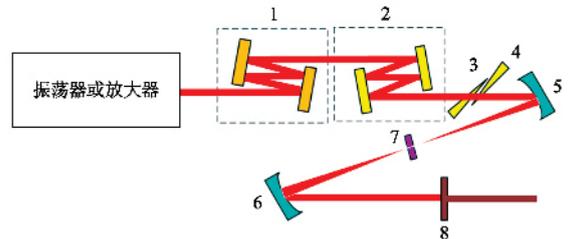


图 2 5fs 超宽谱飞秒激光脉冲直接差频实验装置

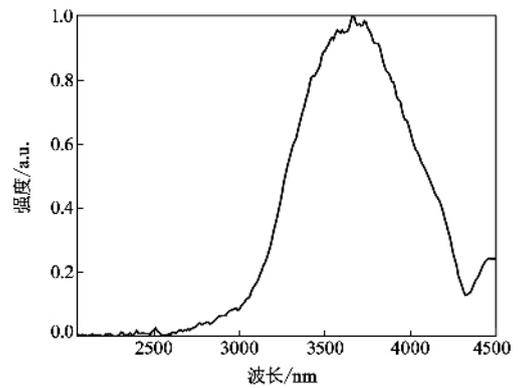


图 3 5fs 激光脉冲差频得到的中红外光谱曲线图

3.2 同步双波长钛宝石飞秒脉冲激光差频

双波长同步钛宝石飞秒激光是差频产生中红外飞秒脉冲的良好光源. 根据钛宝石激光器的不同, 又可分为同步钛宝石振荡器和同步钛宝石放大器差频技术.

3.2.1 同步双波长钛宝石振荡器输出激光的差频

1995 年, Miriam R X de Barrors 等人^[11]首次采用双波长钛宝石飞秒振荡器输出的激光在 AgGaS_2 晶体中差频获得重复频率在 82MHz 的中红外飞秒激光, 调谐范围为 7.5—12.5 μm , 平均功率为 5 μW , 脉宽作为中心波长的函数, 在 450—650 fs 这一范围内波动. 该方法结构简单, 且获得的中红外重复频率较高, 但单脉冲能量却非常低, 约为 6×10^{-14} J.

2003 年, Seth M. Foreman, David J. Jones 等人^[12]以两个主动同步的钛宝石激光器作抽运源, 输

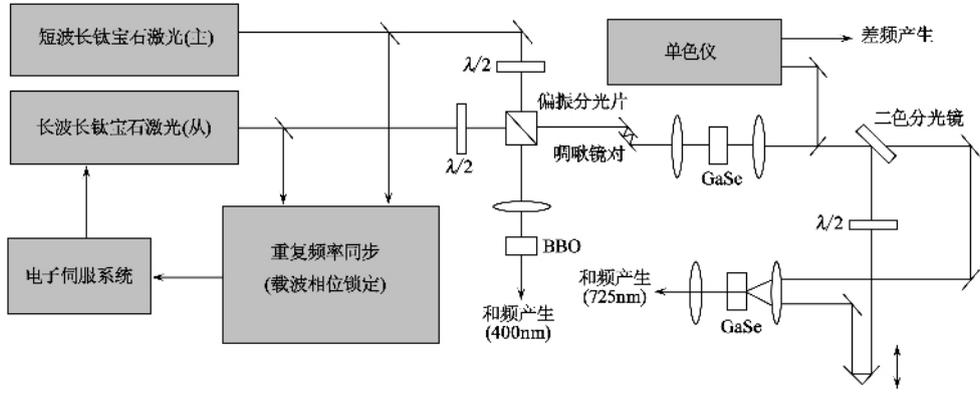


图4 利用主动同步的钛宝石激光器差频实验装置图

出双波长的飞秒脉冲重复频率为 100MHz,功率为 200mW,脉宽为 140 fs,两波长的中心波长分别在 800nm 两侧 20—40nm 的范围内可调。采用 I 类位相匹配的 1mm 厚 GaSe 晶体作为差频晶体,两波长经差频输出可调谐的中红外飞秒脉冲波列,其单脉冲能量为 1.5×10^{-13} J,平均功率超过 $15 \mu\text{W}$,调谐范围为 9.5—12.5 μm ,实验装置如图 4 所示。钛宝石振荡器作为同步差频源优点是实验装置相对简单,所获差频激光重复频率高,但缺点是单脉冲能量较低。

3.2.2 同步双波长钛宝石放大器作为差频源的研究

2002 年 J. Song 及 J. F. Xia 等人^[13]以被动同步双波长钛宝石放大激光作为差频源,AgGaS₂ 为差频晶体,得到脉宽为 730fs、波长在 9—11 μm 范围内调谐、单脉冲能量为 1.6 μJ 的中红外飞秒脉冲输出,实验装置如图 5 所示,图 6 为所得中红外飞秒激光的光谱及脉宽测量图。相比双波长振荡器直接做差频源,经放大产生的高功率激光更有利于获得高转换效率的差频输出,而且脉冲能量远高于振荡器输出的能量,此实验的光转换效率为 2%,影响转换效率进一步提高的因素是 AgGaS₂ 晶体中存在较强的双光子吸收。

3.3 利用光学参量振荡器或光学参量放大器中的信频光和闲频光差频

如上所述,AgGaS₂,AgGaSe₂,GaAs,GaSe 等晶体在 800nm 处有较强的双光子吸收,这大大降低了差频过程的光-光转换效率。为了解决这个问题,James M. Frase 等人^[14]于 1997 年利用 84MHz,90fs 的钛宝石振荡器抽运实现光学参量振荡,随后将产生的大于 1 μm 的信频光和闲频光在 AgGaSe₂ 晶体中差频产生中红外飞秒脉冲,由于避开了双光子吸收范围,因此获得了较高转换效率的中红外飞秒脉

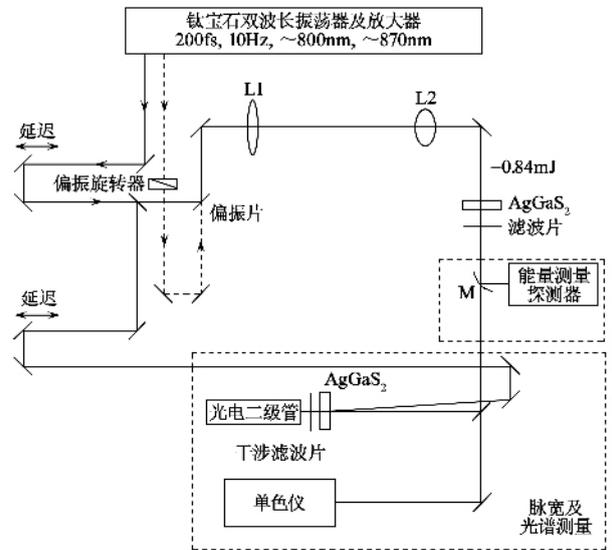


图5 双波长放大激光被动同步差频产生 9—11 μm 中红外激光实验装置

冲输出,图 7 是实验装置图。差频产生的中红外调谐范围为 8—18 μm ,利用互相关法测得其脉宽为 310fs,与理论符合得很好,群速失配和群速度色散限制了输出红外脉冲的最短脉宽。2006 年,Gathie Ventalon 等人^[15]用钛宝石再生放大器抽运的光学参量放大器产生的信频光和闲频光在 GaSe 晶体中差频,输出 5—14 μm 可调谐、能量在微焦量级的中红外激光,将差频晶体换为 CdSe,输出的波长可延伸到 18 μm 。

这种通过多次非线性过程差频的最大优点就是利用光学参量振荡器或光学参量放大器产生的近红外信频光和闲频光去差频,可避免在 800nm 处的双光子吸收,提高转换效率。另外,此法产生的飞秒中红外激光脉冲还具有调谐范围宽、重复频率高的优点,还可通过增加初始抽运光的功率来提高输出的红外光功率,但多个非线性过程会加大装置的复杂性,并且

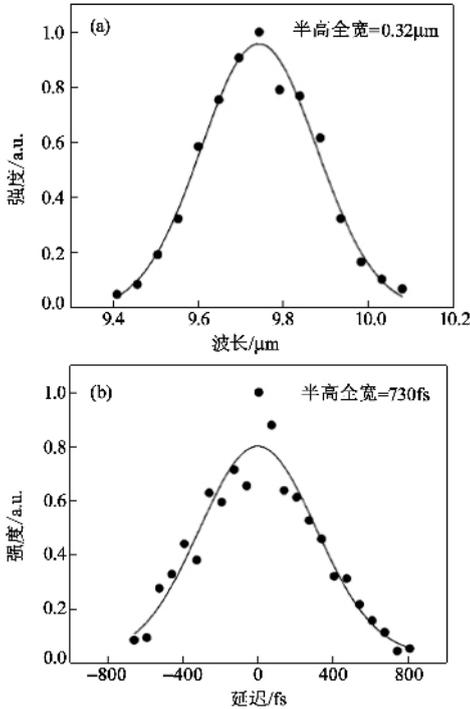


图6 (a)差频产生的9—11 μm 红外脉冲光谱 (b)互相关法测得差频输出中红外激光的脉冲宽度

输出的光经棱镜对压缩后脉宽可低于 40fs. 第一路脉冲光经延迟线与第二路产生的近红外光重合, 通过 2mm 厚的掺 MgO 的 PPLN 晶体后产生了 3.2—4.8 μm 可调谐、平均功率为 1.1mW、重复频率为 82MHz 的中红外脉冲激光, 图 8 为实验装置图. 运用光纤飞秒激光器进行差频的优势在于易操作, 输出稳定, 且产生的中红外激光脉冲功率远远高于用钛宝石振荡器做抽运源产生的中红外激光脉冲.

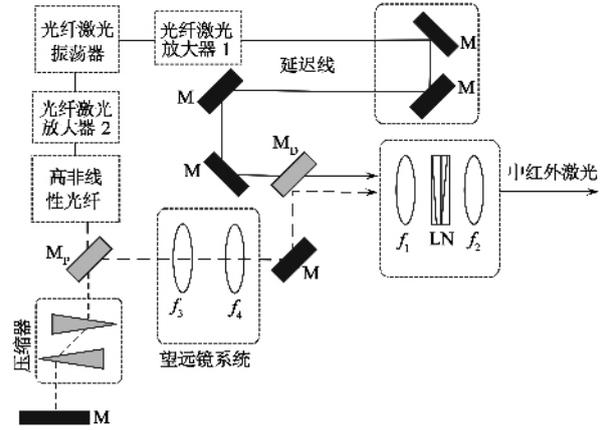


图8 两路锁模掺铒光纤源差频产生中红外飞秒激光实验装置图

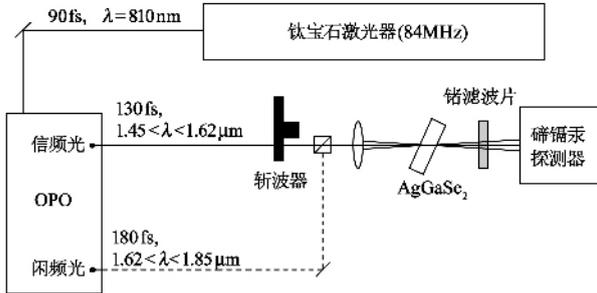


图7 光学参量振荡产生的信号光与闲频光差频实验装置图

信号光和闲频光相对位相不固定, 使得产生的中红外电场随机振荡.

3.4 两路锁模掺铒光纤源差频产生中红外飞秒激光

钛宝石振荡器和放大器一直是产生飞秒超短脉冲的主流, 但是随着半导体和光纤技术的发展, 锁模光纤激光器由于体积更小, 使用更方便, 已成为一个重要的研究热点. 2007 年 C. Erny, K. Moutzouris 和 J. Biegert 等人^[16]以锁模掺铒光纤振荡器为抽运源, 将输出的飞秒脉冲分成两路, 分别进行放大, 第一路放大激光参数为: 中心波长 1.58 μm, 脉宽 65fs, 平均功率 250mW, 重复频率 82MHz, 第二路放大后再经高非线性光纤 (HNLF) 进行光谱展宽, 可获得 1.05—1.4 μm 可调谐、平均功率大于 20mW 的输出光, 从 HNLF

4 总结和展望

综上所述, 差频产生中红外飞秒激光主要有以下几种方法: 超连续飞秒激光直接差频法, 它是差频技术中最简单的方法; 同步双波长钛宝石飞秒脉冲激光差频技术, 与单束激光作差频源相比, 此法所获得的中红外激光能量相对较高; 利用光学参量振荡或光学参量放大中的信号光和闲频光差频, 具有调谐范围宽、重复频率高的优点. 两路锁模掺铒光纤源差频产生中红外飞秒激光, 它的优势在于操作容易、输出稳定、所获中红外激光输出功率远高于钛宝石振荡器做抽运源所产生的中红外激光.

目前用差频法得到的最短中红外脉冲宽度已能到几十飞秒, 并具有可调谐范围宽、全固化紧凑结构、光束质量好且不需要谐振腔等诸多优点, 但普遍存在转换效率低的缺点. 这一方面是所使用的差频晶体的双光子吸收造成的, 另一方面是所采用的抽运光能量偏低. 针对以上两个原因, 解决的办法就是寻找新的差频晶体以及提高抽运光的能量.

差频法产生中红外超短脉冲还有一个优越的特点就是载波包络相位自稳定, 对于超连续飞秒脉冲激光直接差频来说, 因为采用的是同一束脉冲, 经过差频后飞秒脉冲电场的相位项都被减掉, 所以产生

的中红外的载波包络相位就自动为零,实现了自稳定.而其他方案要想实现相位稳定还需稳定抽运源的相位.这种载波包络相移自稳定的中红外飞秒脉冲经放大后可用于强场物理研究、阿秒脉冲产生、相干量子控制等很多前沿领域,并有望开拓出新的交叉研究领域.

参考文献

[1] 崔大复,张杰.物理,1996,23:173[Cui D F, Zhang J. Wuli (Physics),1996,23:173(in Chinese)]

[2] 邓颖,朱启华等.激光与光电子学进展,2006,43(8):21 [Deng Y, Zhu Q H *et al.* Laser and Optoelectronics Progress, 2006,43(8):21(in Chinese)]

[3] 李鸿燕.光机电信息,1999,16(9):22[Li H Y. Optics Mechanics Electronics Information,16(9):22(in Chinese)]

[4] 苏旭,刘涛等.无机化学学报,2006,22:1163[Su X, Liu T *et al.* Chinese Journal of Inorganic Chemistry, 2006,22:1163(in Chinese)]

[5] 李春彦,王锐等.人工晶体学报,2006,35:1022[Li C Y, Wang R *et al.* Journal of Synthetic Crystal, 2006,35:1022(in Chinese)]

[6] Zernike F, Jr, Berman P R. Phys. Rev. Lett., 1965, 15: 999

[7] Kaindl R A, Smith D C, Joschko M *et al.* Opt. Lett., 1998, 23: 861

[8] Likforman J P, Mehendale M, Villeneuve D M *et al.* Opt. Lett., 2001, 26(2): 99

[9] Han H N, Zhao Y Y, Zhang W *et al.* Enhanced S/N ratio of carrier-envelope offset frequency by using a new monolithic measurement scheme APLS (Asia Pacific Laser Symposium) 2008, Jan 30 to Feb 1

[10] 吴晓丽,韩海年,朱江峰等.差频产生 kHz 中红外飞秒脉冲的研究.第十三届全国基础光学与光物理学术讨论会,海拉尔 2008[Wu X L, Han H N, Wei Z Y *et al.* Generation of KHz mid-infrared femtosecond pulse with difference frequency. The Thirteenth national basic optics and optical physics symposium, 2008(in Chinese)]

[11] Miriam R X de Barrors, Miranda R S *et al.* Opt. Lett., 1995, 20(5): 480

[12] Foreman S M, Jones D J, Ye J. Opt. Lett., 2003, 28(5): 370

[13] Song J, Xia J F, Zhang Z *et al.* Opt. Lett., 2002, 27(3): 200

[14] Fraser J M, Wang D K *et al.* Appl. Opt., 1997, 36: 5044

[15] Ventalon C, Fraser J M, Likforman J P. Opt. Soc. Am. B, 2006, 23(2): 332

[16] Erny C, Moutzouris K, Biegert J *et al.* Opt. Lett., 2007, 32: 1138

· 物理新闻和动态 ·

砷化铁高温超导

寻找新颖的高温超导材料已经成为高温超导课题的一大难点了.2008年,在美国新奥尔良市召开的美国物理学会3月会议上,日本东京技术研究所的 Hideo Hosono 教授和他的研究组在大会上展示了他们的成果.他们使砷化铁化合物在 50 K 温度的条件下转变为超导体.这项成果给高温超导课题注入了一支强心针.在整个 2008 年内,发表了大量有关高温超导的论文.论文内容主要是探讨高温超导的理论,特别是为什么含有强磁性原子(如铁原子)的化合物可以存在超导性质?对于这些讨论可能会产生两种效果:一种是使科学界能更全面地了解形成超导性质的物理原因,从而开辟出一条寻找高温超导材料的新途径;另一种可能是使高温超导这潭泥水搅得更浑.当然还有一些论文是涉及如何将砷化铁材料应用于实际的问题,例如应用于医疗器械和大型加速器等科学设备上.总之,2008年在高温超导方面是一个具有新突破的好年.

(云中客 摘自 Physics News Update, #879, 22 December 2008)



独家代理销售加拿大 GENTEC-EO 生产的激光功率能量计及光束分析仪,其产品具有功率、能量探测头规格全,宽光谱响应,探头损伤阈值高、灵敏度高,SOLO 显示器自动识别每个探头,带有自动校准功能,光束分析仪定量、定性分析激光束等特点.



独家代理销售美国 STELLARNET 生产的微型光纤光谱仪,其产品具有多种型号规格可选,坚固耐用、轻巧便携,波长范围覆盖 190—2200nm,适合于实验室、现场及野外的光谱测量.



联系人 粟曼珊 sumanshan@goldway.com.cn 联系电话 D10-84562860 84562550 传真 D10-84569901



北京欧普特科技有限公司 <http://www.goldway.com.cn>
北京朝阳区酒仙桥东路一号 M7 栋东五层 100016