

doi: 10.11823/j.issn.1674-5795.2023.05.07

基于差频产生的中红外飞秒激光技术研究

李刻泰, 武腾飞*, 夏传青

(航空工业北京长城计量测试技术研究所, 北京 100095)

摘要: 针对国内中红外激光光源光谱范围小、脉冲宽度宽等问题, 开展了基于差频(DFG)产生的中红外飞秒激光技术研究。差频产生的中红外飞秒激光具有光谱范围宽、脉宽窄等优势。研究了差频技术中选用不同的非线性晶体对产生的中红外激光的影响, 在此基础上搭建了一套基于差频技术的、利用PPLN晶体产生的中红外激光的产生系统, 利用光栅对压缩脉宽, 实现飞秒激光输出。最终获得了波长范围在 $2.9 \sim 4.7 \mu\text{m}$ 的中红外飞秒激光, 在中心波长 $3.2 \mu\text{m}$ 处获得了最高 10.46 mW 的输出光平均功率。研究结果为中红外激光光谱测量技术在大气监测、燃烧场组分探测等的应用提供了参考。

关键词: 差频技术; 中红外; 飞秒激光

中图分类号: TB96

文献标志码: A

文章编号: 1674-5795(2023)05-0049-07

Research on mid-infrared femtosecond laser technology based on difference frequency generation

LI Ketai, WU Tengfei*, XIA Chuanqing

(Changcheng Institute of Metrology & Measurement, Beijing 100095, China)

Abstract: Aiming at the narrow spectral range and wide pulse width of domestic mid-infrared laser sources, research on mid-infrared femtosecond laser technology based on difference frequency generation (DFG) was carried out. The mid-infrared femtosecond laser generated based on DFG has the advantages of a wide spectral range and narrow pulse width. The influence of different nonlinear crystals on the generated mid-infrared laser in DFG was studied. On this basis, a mid-infrared laser generation system based on DFG using a PPLN crystal was conducted. Further, this system used grating pairs to compress the pulse width to achieve femtosecond laser output. Finally, a mid-infrared femtosecond laser with a tunable wavelength range of $2.9 \sim 4.7 \mu\text{m}$ was observed, and the highest average output light power of 10.46 mW was obtained at a central wavelength of $3.2 \mu\text{m}$. The research results provide a reference for the application of mid-infrared laser spectroscopy measurement technology in atmospheric monitoring, combustion field component detection, etc.

Key words: Difference Frequency Generation; mid-infrared; femtosecond laser

0 引言

中红外波段光谱学方法在气体组分等测量中具有重要的应用价值, 如全球 CO_2 等温室气体浓度

及空间分布的监测、工业排放的气体中 NO 、 CO 等大气污染物的监测等^[1-5]。针对燃烧场, 工业上需要探究复杂燃烧场的燃烧反应规律, 因此, 场中红外气体组分的高精度测量也有着迫切需要^[6-9]。

收稿日期: 2023-04-27; 修回日期: 2023-05-17

基金项目: 国家“十四五”计量技术基础科研项目(JSJL2022205B002); 航空创新基金项目(ZC02101586)

引用格式: 李刻泰, 武腾飞, 夏传青. 基于差频产生的中红外飞秒激光技术研究[J]. 计测技术, 2023, 43(5): 49-55.

Citation: LI K T, WU T F, XIA C Q. Research on mid-infrared femtosecond laser technology based on difference frequency generation[J]. Metrology & Measurement Technology, 2023, 43(5): 49-55.



中红外飞秒激光具有带宽高、短时稳定和长时稳定效果好的特点,近年来在光谱测量方面实现了长足的进步^[10-11]。但因缺少合适的中红外激光光源,中红外分子光谱的数据缺少高精度的激光光谱结果。

在产生中红外激光光源的技术中,差频技术(Different Frequency Generation, DFG)是国内外研究方向的热点。2003年,美国国家标准与技术研究院(National Institute of Standards and Technology, NIST)首次提出利用DFG方法由近红外光产生中红外激光的技术^[12]。2017年, Soboń. G等人利用DFG方法产生了脉宽为115 fs、波长范围在2.7~4.2 μm的中红外激光^[13]。2018年, Ycas. G等人将波长范围扩展至2.6~5.2 μm^[14]。2020年,浙江大学成功产生波长范围在2.03~3.03 μm的中红外激光,但脉宽在纳秒量级^[15]。2021年,华东师范大学成功将脉宽压缩至皮秒量级,但波长范围不足1.0 μm^[16]。与国外由DFG方法产生的中红外激光成果相比,国内目前的研究成果在光谱范围和脉宽上均存在不足。

目前,国内单位针对中红外激光利用DFG方法做了许多工作,但基本采用大功率掺铋飞秒光纤作为泵浦源,采用1.55 μm中心波长掺铋飞秒光纤激光器两路扩谱、放大的方案则鲜有报道。本实验将基于DFG产生中红外激光技术与基于空间光栅对压缩脉宽技术结合,以实现输出中红外光源脉宽的压缩,同时通过对差频的两部分光路分别扩谱以增大周期极化铌酸锂晶体(Periodically Poled Lithium Niobate, PPLN)的调谐区间。对该方案的基本原理进行详细介绍,并搭建了相应的DFG实验系统,验证了该方案的可行性。

1 DFG与脉宽压缩的基本原理

1.1 差频产生中红外激光的原理

当两束具有一定频率差、功率达百毫瓦量级的激光光束入射到非线性晶体时,能产生一束频率为两入射激光频率之差的激光,该现象称为非线性效应中的差频效应。此频率下转换过程为:将频率为 f_p 的泵浦光和频率为 f_n 的信号光频梳入射到非线性晶体中,对应产生频率为 f_i 的闲频光,如图1所示。

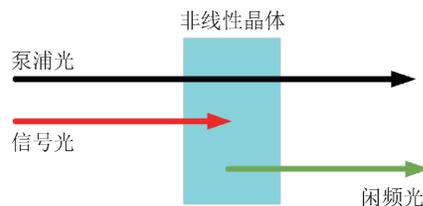


图1 DFG过程

Fig.1 DFG Process

$$f_i = |f_n - f_p| \quad (1)$$

将式(1)中的频率与光的波长联系,得到输出激光 λ_i 与两个种子光 λ_n 、 λ_p 的关系式为

$$\lambda_i = \frac{\lambda_n \lambda_p}{|\lambda_n - \lambda_p|} \quad (2)$$

由式(2)可知,当 λ_n 与 λ_p 分别位于1.3~1.4 μm与1.0 μm时,理论上能产生中红外波段光。

产生中红外激光的效果与发生作用的非线性晶体的特性息息相关。以PPLN为例,该晶体利用准相位匹配(Quasi-phase Matching, QPM)技术,在某一晶格的同一极化周期内,因对不同波长折射光的折射率不同,故对于入射进该晶格内近红外激光,理论上能得到较宽调谐范围的窄线宽中红外激光,但激光波长最长到5.0 μm便截止了^[17]。对于利用DFG技术的GaSe晶体,更适用于中长波红外光,能产生波长范围在7~18 μm的宽光谱^[18]。主要是因为该负单轴晶体材料具有较高的二阶非线性系数($d^{22} = 54 \text{ pm/v}$)^[19],且中红外波段品质因素较高,能在很长的波段范围内满足相位匹配条件。值得注意的是,与PPLN晶体满足的准相位匹配不同,该晶体主要满足角度相位匹配。由于双光子吸收效应及群速度失配,利用2 μm的种子源激光进行差频将会比1 μm的光源获得的中红外激光品质更佳。

1.2 利用光栅对压缩激光脉宽的原理

光栅是利用光的衍射效应,将不同波段的入射光衍射成多个光束。利用光栅对不同波长波段具有不同衍射角的特性,经过第一片光栅后多束光所走光路、光程不同,经过第二片与之平行的光栅再经反射镜反射、原路返回后,便能形成与原啁啾脉冲符号相反的啁啾,以达到压缩脉冲的目的。光栅对压缩脉宽的过程如图2所示,该模型称为Treacy型空间脉冲压缩结构,由美国UARL公司的Treacy. E于1969年首次提出^[21]。2016年,北

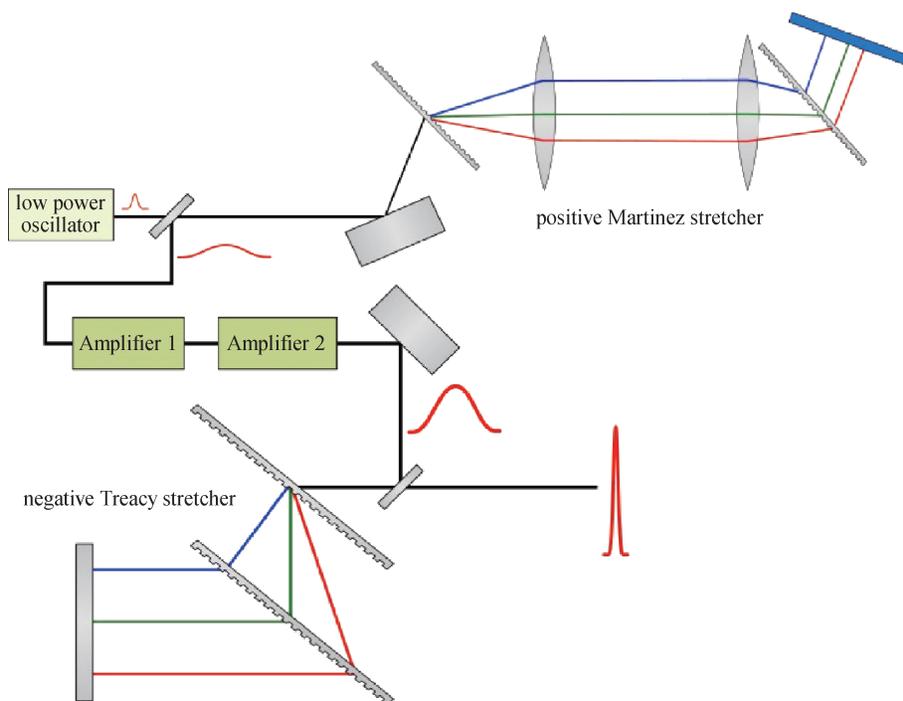


图2 光栅对压缩脉宽的过程^[20]

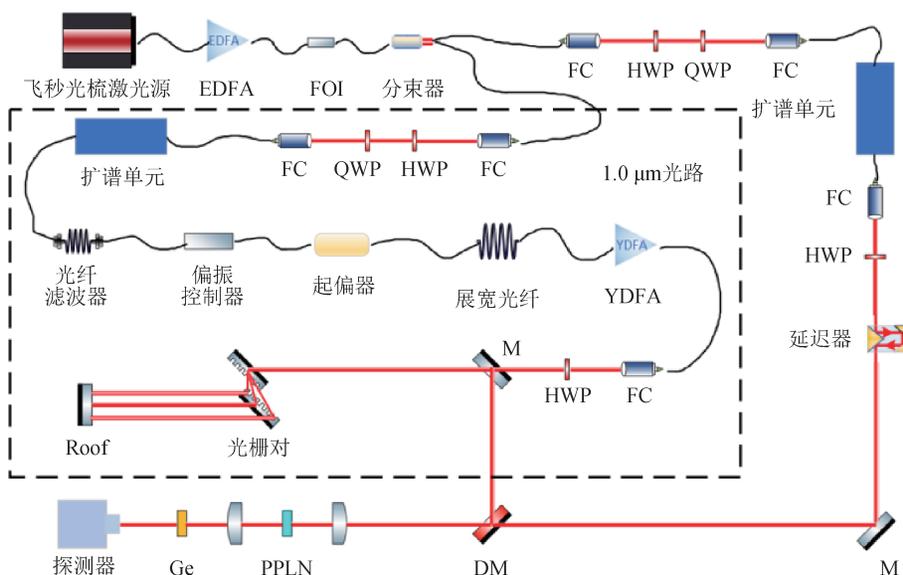
Fig.2 Process of compressing pulse width with grating^[20]

京工业大学的谭方舟等人^[22]利用该结构光栅对成功将脉宽为1.1 ps的种子光源压缩至241 fs。

利用光栅对压缩脉宽的优势在于压缩脉宽的过程是在空气中进行的，相比其他光纤介质，能有效降低非线性效应带来的影响，如非线性相移累积带来的脉冲畸变。

2 实验系统

依上述原理，搭建了如图3所示的基于DFG产生中红外飞秒激光的实验系统。本系统整体上分为三个部分：第一个部分为近红外飞秒光梳激光源，作为整个系统的种子光输入；第二个部分为



注：EDFA-掺铒光纤放大器；YDFA-掺镱光纤放大器；FOI-光纤隔离器；FC-光纤准直镜；HWP-1/2波片；QWP-1/4波片；Roof-屋脊棱镜；M-反射镜；Ge-锗滤光片。

图3 基于差频技术产生的中红外飞秒激光系统

Fig.3 Generating MIR femtosecond laser system based on DFG Technology

光纤扩谱及放大单元,用于产生发生差频所需要的泵浦及信号光;第三个部分为调节两路光时空重合的空间光路,用于发生差频。

首先,种子光经由EDFA放大后分束,再各自经过EDFA放大后进入扩谱单元,分别产生光谱范围为 $1.0 \sim 1.1 \mu\text{m}$ 与 $1.3 \sim 1.5 \mu\text{m}$ 的光,前一路称为 $1.0 \mu\text{m}$ 光路(如图3中“ $1.0 \mu\text{m}$ 光路”所示),后一路称为 $1.5 \mu\text{m}$ 光路。 $1.0 \mu\text{m}$ 光路中,激光通过滤波、控制偏振、展宽与高功率放大后进入空间光路进行脉宽压缩,经屋脊棱镜在水平方向原路返回,垂直方向下移射入反射镜M后进入最下方的光路部分。分束器中出射的另一束 $1.5 \mu\text{m}$ 光进入空间光路后先经过延迟器,后与 $1.0 \mu\text{m}$ 光在分色镜DM上汇合,经透镜聚焦后共同进入PPLN晶体发生差频效应,输出光经过滤光片后只剩下中红外波段的激光进入探测器。

在本系统中,扩谱单元的作用是利用HNLf(高非线性光纤)具有的非线性效应特性,将中心波长 1550 nm 的激光光谱扩展至所需要的波段。由式(2)知,欲产生 $3 \sim 5 \mu\text{m}$ 波段的中红外激光,需 $1.0 \mu\text{m}$ 左右的激光与 $1.3 \sim 1.5 \mu\text{m}$ 的激光进行差频,因此需要选取不同种类的高非线性光纤(Highly Non-Linear Fiber, HNLf)。同时,因为加入了高非线性光纤,在本单元里也熔接了一部分单模光纤来对其引入的色散进行补偿。

为了将扩谱得到的低功率光谱成分进行放大,选用了对于 $1.0 \mu\text{m}$ 响应的掺镱光纤放大器。同时采用啁啾脉冲放大技术,先将 $1.0 \mu\text{m}$ 部分光进行展宽至十皮秒量级,再通过空间光栅对进行脉宽压缩,从而达到提高峰值功率的效果。

为了提高泵浦功率的转换效率,两束光需要尽可能达到时空的重合。空间重合通过监测二者光斑尺寸与重合情况调整,时域上本系统则选用了空间结构的延迟器作为补偿,利用高灵敏度示波器进行监测,而在最后探测到中红外信号时也能根据信号强度反过来精密地调整延迟线,以提高时域上两光束的重合度。

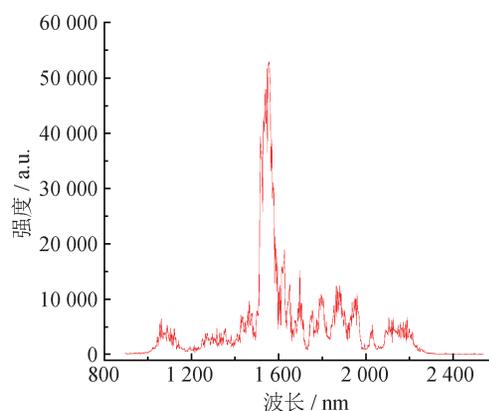
种子光为实验室自制的中心波长为 1550 nm 的飞秒光纤激光器,重复频率为 110 MHz ,功率为 1.5 mW ,脉宽在百飞秒量级。 $1.0 \mu\text{m}$ 处HNLf选

用了长飞公司NL 1550-POS型号的高非线性光纤,而 $1.5 \mu\text{m}$ 处HNLf则选用了该公司NL 1550-NEG型号的高非线性光纤。

3 实验结果

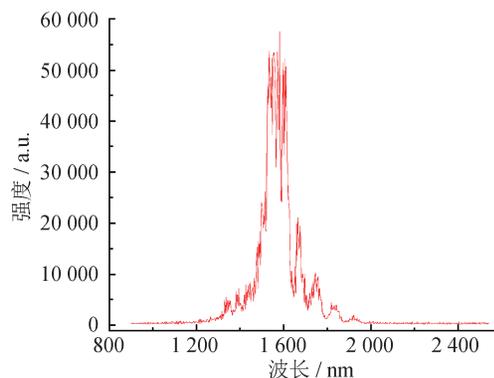
使用Ocean Optics公司型号为NIRQUEST+2.5的光谱仪探测到的扩谱结果如图4所示,本实验分别将中心波长为 1550 nm 的种子光扩谱到了 $1030 \sim 2320 \text{ nm}$ 与 $1190 \sim 2080 \text{ nm}$ 。前者涵盖了 $1.0 \mu\text{m}$ 光路所需的 $1040 \sim 1080 \text{ nm}$ 波长的成分,后者涵盖了 $1.5 \mu\text{m}$ 光路所需的 $1300 \sim 1800 \text{ nm}$ 波长的成分,因此扩谱结果符合本实验发生差频效应所需的所有有效波段。

$1.0 \mu\text{m}$ 光路部分中,选用拉伸光纤进行展宽,将原百飞秒量级的激光脉冲展宽至十皮秒量级,后利用德国Gitterwerk公司型号为1534_33x18_3-N的空间光栅对进行脉宽压缩,利用近红外自相关仪测量脉宽,压缩结果如图5所示。由图5可以看



(a) $1.0 \mu\text{m}$ 光路扩谱结果

(a) Spectrum expansion results of $1.0 \mu\text{m}$ optical path



(b) $1.5 \mu\text{m}$ 光路扩谱结果

(b) Spectrum expansion results of $1.5 \mu\text{m}$ optical path

图4 两部分光路扩谱结果

Fig.4 Spectrum expansion results of two optical path

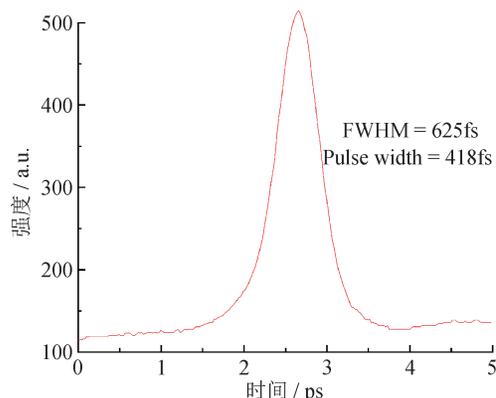


图5 1.0 μm光路脉宽压缩效果

Fig.5 Pulse width compression result of 1.0 μm optical path

出, 脉冲的半高全宽(Full Width at Half Maxima, FWHM)为645 fs, 将之除以双曲正割反卷积因子1.543得1.0 μm光脉冲实际脉宽为418 fs。该光栅对中心波长1 064 nm的光衍射角为66.7°, 间距在约4 mm时压缩效果最佳, 受光栅对尺寸的限制, 1.0 μm光路光束脉宽调节范围为418 fs ~ 6.2 ps。放大器前的展宽器用了具有负三阶色散的展宽光纤, 可以补偿光栅带来的正三阶色散, 使脉宽压缩到较理想的水平, 满足实验的要求。三阶以上更高阶的色散情况暂未考虑。

在经过PPLN后产生的中红外飞秒激光中, 本实验通过调节晶体位置, 产生了波长范围在2.9 ~ 4.7 μm的可调谐中红外飞秒激光。其中, 在3.2 μm波长处探测得到的功率最高, 为10.46 mW。因3.2 μm波长光在理论上是由1 550 nm光与1 045 nm光差频得来, 实验中位于这两处波长的激光功率最高, 因此差频得来的3.2 μm激光功率最高, 表明实验结果与理论结果一致, 此时获得的中红外光谱如图6所示。

本实验能探测到的最长波长的中红外飞秒激光在4.7 μm, 如图7所示。而4.7 μm及以上波长的中红外激光受限于两路光发生差频的光谱成分峰值功率、脉冲宽度、偏振状态及PPLN晶体的极化周期参数的影响, 导致其功率太低, 实验中无法观测到。其中, 实验系统中能够通过调整两路光波片组、更换更长周期的PPLN来解决后两个问题。因此主要影响因素为1.0 μm泵浦光功率与1.5 μm光路扩谱效果。

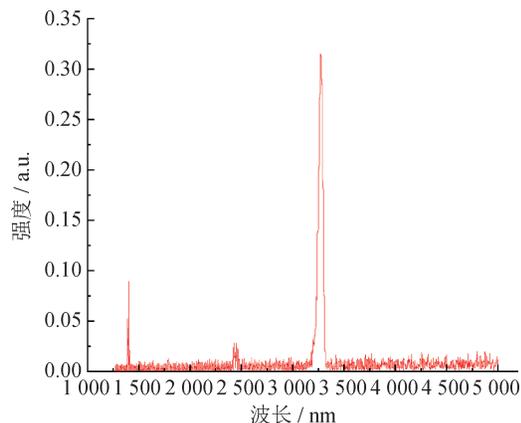


图6 实验中产生的3.2 μm波长中红外飞秒激光

Fig.6 3.2 μm MIR femtosecond laser generated in the experiment

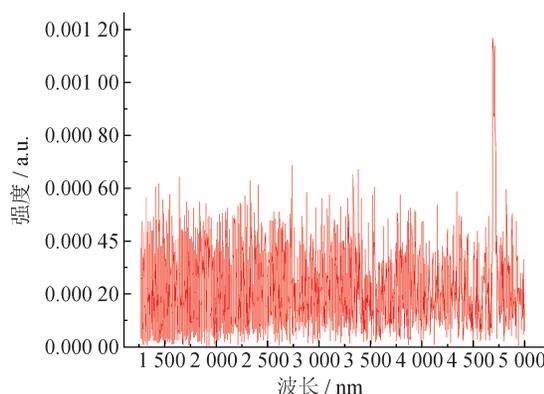


图7 实验中产生的4.7 μm波长中红外飞秒激光

Fig.7 4.7 μm MIR femtosecond laser generated in the experiment

4 结论

设计并搭建了一套基于差频技术产生中红外飞秒激光的实验系统, 最终得到了2.9 ~ 4.7 μm可调谐的中红外飞秒激光。经试验, 验证了由近红外飞秒激光产生中红外飞秒激光的准确性与有效性、空间光栅对压缩脉宽的高效率特性与精确性。该系统为中红外光谱测量技术提供了良好的光源基础, 为其在大气监测、燃烧场气体组分探测等应用提供了参考。由于1.5 μm光路扩谱光中1.3 ~ 1.4 μm波长范围光束的峰值功率及脉宽与1.0 μm光功率是影响产生的中红外飞秒激光功率的主要因素, 下一步工作是通过优化1.5 μm光路的扩谱效果与1.0 μm光路的放大器功率, 进而提升已经探测到的中红外波长激光的功率, 并尝试产生4.7 ~ 5.0 μm波长范围的中红外飞秒激光。

参考文献

- [1] BAUMGARTL M, LECAPLAIN C, HIDEUR A, et al. 66 W average power from a microjoule-class sub-100 fs fiber oscillator[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(10):1640-1642.
- [2] 路桥, 时雷, 毛庆和. 双光梳光谱技术研究进展[J]. *中国激光*, 2018, 45(4): 1-22.
LU Q, SHI L, MAO Q H. Research advances in dual-comb spectroscopy[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2018, 45(4): 1-22. (in Chinese)
- [3] 杨昌喜, 赵康俊, 曹博, 等. 单腔双光梳锁模光纤激光器及其应用研究进展[J]. *中国激光*, 2021, 48(15): 3-19.
YANG C X, ZHAO K J, CAO B, et al. Recent progress of single-cavity dual-comb mode-locked fiber lasers and their applications [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(15): 3-19. (in Chinese)
- [4] PACHAURI R K, ALLEN M R, BARROS V R, et al. Climate change 2014: synthesis report. Contribution of Working Groups I, II and III to the fifth assessment report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [M]. IPCC, 2014.
- [5] 章紫覃. 光频梳锁定的中红外光参量振荡激光光谱探测系统[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2020.
ZHANG Z T. Mid - infrared spectrum detection system based on a comb-locked optical parametric oscillator[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2020. (in Chinese)
- [6] 邓瑶, 唐雯, 李峥辉, 等. 基于直接吸收峰峰值标定的气体浓度反演方法研究[J]. *激光与光电子学进展*, 2021, 58(3): 317-324.
DENG Y, TANG W, LI Z H, et al. Gas concentration inversion method based on calibration of direct absorption peak value [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2021, 58(3): 317-324. (in Chinese)
- [7] LIVEBARDON T, MOREAU S, GICQUEL L, et al. Combining LES of combustion chamber and an actuator disk theory to predict combustion noise in a helicopter engine [J]. *Combustion and Flame*, 2016, 165: 272-287.
- [8] TACHIBANA S, SAITO K, YAMAMOTO T, et al. Experimental and numerical investigation of thermo-acoustic instability in a liquid-fuel aero-engine combustor at elevated pressure: Validity of large-eddy simulation of spray combustion [J]. *Combustion and Flame*, 2015, 162(6): 2621-2637.
- [9] LIU Q L, BACCARELLA D, LEE T H. Review of combustion stabilization for hypersonic airbreathing propulsion [J]. *Progress in Aerospace Sciences*, 2020, 119: 100636.
- [10] 侯皓严, 邹晓旭, 马小睿, 等. 单腔双光梳激光器及其应用研究[J]. *计测技术*, 2022, 42(5): 61-73.
HOU H Y, ZOU X X, MA X R, et al. Review of single-cavity dual-comb laser and its application [J]. *Metrology & Measurement Technology*, 2022, 42(5): 61-73. (in Chinese)
- [11] 张志刚. GHz重复频率飞秒激光器发展趋势[J]. *计测技术*, 2022, 42(6): 11-16.
ZHANG Z G. Development trend of GHz repetition rate femtosecond laser[J]. *Metrology & Measurement Technology*, 2022, 42(6): 11-16. (in Chinese)
- [12] FORMAN S M, JONES D J, YE J. Flexible and rapidly configurable femtosecond pulse generation in the mid-IR [J]. *Optics Letters*, 2003, 28(5): 370.
- [13] SOBOŃ G, MARTYNKEIN T, MERGO P, et al. High-power frequency comb source tunable from 2.7 to 4.2 μm based on difference frequency generation pumped by an Yb-doped fiber laser[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(9):1748-1751.
- [14] YCAS G, GIORGETTA F, BAUMANN E, et al. High coherence mid-infrared dual comb spectroscopy spanning spectroscopy spanning 2.6 to 5.2 microns[J]. *Nature Photonics*, 2018, 12(4): 202-208.
- [15] 乐文杰. 基于激光差频技术的高功率中红外皮秒脉冲簇激光光源研究[D]. 杭州: 浙江大学, 2020.
LE W J. Research on high power mid-infrared picosecond pulse bunch laser sources based on difference frequency generation [D]. Hangzhou: Zhejiang University, 2020. (in Chinese)
- [16] 方迦南, 郭政儒, 闫明, 等. 同步脉冲诱导的高功率中红外差频产生技术(特邀)[J]. *红外与激光工程*. 2021, 50(8): 83-91.
FANG J N, GUO Z R, YAN M, et al. High-power mid-infrared difference-frequency generation based on synchronous pulse induction (Invited) [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2021, 50(8): 83-91. (in Chinese)
- [17] 秦雪飞. 基于PPLN晶体的中红外差频激光技术研究

- [D]. 金华: 浙江师范大学, 2010.
- QIN X F. The investigation of Mid - Infrared Difference Frequency laser generation based on PPLN crystal[D]. Jinhua: Zhejiang Normal University, 2010. (in Chinese)
- [18] ZHOU G, CAO Q, FRANZ X, et al. Energy scalable, offset-free ultrafast mid-infrared source harnessing self-phase-modulation-enabled spectral selection[J]. Optics Letters, 2018(43): 2953-2956.
- [19] 李建松, 姚建铨, 徐小燕, 等. 基于 GaSe 差频产生 8 ~ 19 μm 可调中红外辐射[J]. 光子学报, 2010, 39(8): 1491-1495.
- LI J S, YAO J Q, XU X Y, et al. Generation of tunable and continuous mid-infrared-radiation in the range of 8 ~ 19 μm based on DFG in GaSe[J]. Acta Photonica Sinica, 2010, 39(8): 1491-1495. (in Chinese)
- [20] IBSEN PHOTONICS. White Paper: Pulse stretching and compressing using grating pairs[A/S]. (2017)[2023-04-24]. <https://ibsen.com/resources/grating-resources/pulse-stretching-and-compressing-using-grating-pairs/>.
- [21] TREACY E. Optical pulse compression with diffraction gratings[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 1969, 5(9): 454-458.
- [22] TAN F, SHI H, SUN R, et al. 1 μJ , sub-300 fs pulse generation from a compact thulium-doped chirped pulse amplifier seeded by Raman shifted erbium-doped fiber laser[J]. Optics express, 2016, 24(20): 22461-22468.

(本文编辑: 朱俊真)



第一作者: 李刻泰 (1998—), 男, 硕士研究生, 主要从事中红外飞秒激光源及其光谱测量技术的研究。



通讯作者: 武腾飞 (1983—), 男, 研究员, 博士, 主要从事超快激光精密光谱测量技术的研究。