

光纤激光器泵浦的飞秒光学参量振荡器研究进展

胡明列*, 王珏, 范锦涛

天津大学精密仪器与光电子工程学院超快激光研究室 & 光电信息技术教育部重点实验室, 天津 300072

摘要 超快光学参量振荡器(OPOs)是获得高重复频率、高平均功率、宽光谱调谐脉冲输出的理想途径,为化学、生物、纳米光子学等领域的研究提供了强有力的手段。随着掺 Yb³⁺ 光纤飞秒激光器输出功率的不断提升及非线性晶体制备工艺的成熟,Yb 光纤激光器泵浦的飞秒 OPOs 发展势头变得锐不可挡。回顾了近年来光纤飞秒激光器泵浦的 OPOs 的研究进展,介绍了利用飞秒 OPOs 拓宽波长覆盖范围、提升脉冲重复频率、获得少周期脉冲产生、实现结构光场输出的具体技术方案。最后介绍了飞秒 OPOs 在纳米光子学、拉曼光谱技术领域的应用。

关键词 非线性光学; 光学参量振荡器; 光纤飞秒激光器; 少周期脉冲; 结构光场; 纳米光子学

中图分类号 O437

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202148.1901001

1 引言

非线性光学是研究光与物质相互作用现象和机理的一门学科^[1]。激光具备单色性、相干性、方向性和高亮度的优异特性;1960 年,激光器的发明为非线性光学频率变换技术的发展提供了强有力的工具,次年, Franken 等^[2]采用红宝石激光器将激光聚焦在石英晶体上,发现了二次谐波,首次利用激光器观察到非线性效应,也拉开了利用激光器产生非线性效应的帷幕。非线性过程的转换效率与入射光场的峰值功率成正比相关,超短脉冲尤其是飞秒激光具备高峰值功率、窄脉冲宽度、宽光谱覆盖范围的优良特性,为高效率的非线性过程提供了保障,而反过来非线性光学频率变换技术可以极大地拓宽激光器输出波长范围,使其满足更为广泛的应用需求。其中,飞秒激光器泵浦的光学参量振荡器(OPOs),兼备了飞秒激光器和 OPOs 的良好特性,输出激光具有高峰值功率、窄脉冲宽度和宽光谱调谐范围,被广泛应用于光谱学、生物光子学、纳米光子学、遥感探测、光学频率梳等领域^[3-7]。

首台飞秒 OPO 的搭建可以追溯到 1989 年,由 Edelstein 等^[8]利用碰撞锁模染料激光器泵浦 KTP 晶体成功搭建,获得可调谐脉冲输出。飞秒 OPO

的发展与泵浦激光源及相位匹配晶体的兴起和发展密不可分。如今,飞秒 OPO 的主流泵浦光源为钛宝石激光器和光纤飞秒激光器。其中,虽然钛宝石激光器的输出光谱覆盖范围极宽,但受限于钛宝石晶体的热效应,输出平均功率有限,这大大限制了泵浦 OPO 的输出功率^[9];而光纤飞秒激光器有着结构紧凑、环境稳定性好、鲁棒性良好的特性,特别是在输出平均功率方面,光纤飞秒激光器有着无可比拟的优势,成为近年来飞秒 OPO 的理想泵浦光源^[10-11]。伴随着诸如 BBO、BIBO、CdSiP₂ 等双折射晶体, MgO:PPLN、PPKTP 等周期极化晶体的研制成功,光纤飞秒激光器泵浦的 OPO 成为超快非线性光学领域的研究热点,其已经可以实现紫外至中红外乃至远红外输出,其输出脉冲宽度可窄至几个光学周期^[12-13]。

本文阐述了光纤飞秒激光器泵浦的 OPO 在输出波长覆盖范围、脉冲宽度、重复频率、实现可控结构光场输出方面的研究前沿,简要介绍飞秒 OPO 在拉曼光谱学、纳米光子学方面的应用,并对其未来发展和应用领域进行展望。

2 飞秒光学参量振荡器研究进展

OPO 是指将非线性晶体放置在谐振腔内,利用

收稿日期: 2021-06-01; 修回日期: 2021-07-01; 录用日期: 2021-07-21

基金项目: 国家自然科学基金(61535009, 61377041)、天津市杰出青年基金(17JCJQC43500)

通信作者: *huminglie@tju.edu.cn

混频特性实现光学频率变换的器件。与激光器不同, OPO 的增益介质是非线性晶体, 非线性晶体不存在能级结构, 因此 OPO 可以突破传统激光器增益带宽的限制, 在满足相位匹配条件的情况下, 实现多波长宽带可调谐输出。对于飞秒激光脉冲泵浦而言, 由于其脉冲持续时间短, 且存在群速度走离现象, 非线性晶体不能太长, 激光单次通过该晶体时产生的增益有限, 因此飞秒 OPO 多采用同步泵浦腔结构。如今, 光纤飞秒激光器泵浦的 OPO 是可调谐激光技术领域不可或缺的组成部分。为了满足科研和应用需求, 光纤飞秒激光器泵浦的 OPO 也在不断地被拓展, 其朝着波长覆盖范围更广、输出平均功率或单脉冲能量更高、重复频率更高、脉冲持续时间更短的方向发展; 近些年也有将飞秒 OPO 与新型结构光场光束相结合的报道, 这些研究获得了可调谐矢量光束输出。下面将分别介绍光纤飞秒激光器泵浦的 OPO 在这几方面的研究进展。

2.1 实现宽光谱覆盖范围

如前所述, 利用光纤飞秒激光器泵浦的 OPO 可以拓宽激光器输出波长范围, 获得激光器难以获得的波长输出, 如何有效利用 OPO 获得紫外波段、可见光波段和中远红外脉冲可调谐输出是近些年飞秒 OPO 的研究热点和难点。

可调谐超快紫外光源以其单光子能量高, 在量子通信、光学存储、激光加工、气体检测、生物成像等诸多领域有着重要的应用^[14-16]。光纤飞秒激光器泵浦的 OPO 是获得紫外可调谐脉冲输出的重要技术手段。利用光纤飞秒激光器作为泵浦光源, 结合腔内和频或者倍频技术, 飞秒 OPO 可以实现紫外波段的可调谐输出。2015 年, Gu 等^[17]利用 Yb 激光器输出激光的二倍频和 PPLN-OPO 输出的信号光进行腔内和频, 输出了 385~400 nm 的紫外可调谐飞秒激光脉冲。实验中利用非共线相位匹配的方式补偿绿光与腔内运行信号光的群速度色散, 有效提升输出紫外波段激光的输出功率, 在泵浦功率为 2 W 的情况下, 输出波长为 387 nm 时获得的输出功率为 402 mW, 对应输出的紫外激光的脉冲宽度为 286 fs。次年, Fan 等^[18]利用 Yb 激光器的倍频绿光作为泵浦光、LBO 晶体作为 OPO 晶体, 结合腔内倍频技术, 将光纤飞秒激光器泵浦的 OPO 输出波长拓展到了紫外 330 nm 波段, 其实验装置图如图 1 所示。

调谐 LBO 晶体的温度, 该 OPO 可以输出 660~884 nm 的可调谐信号光, 进一步改变腔内

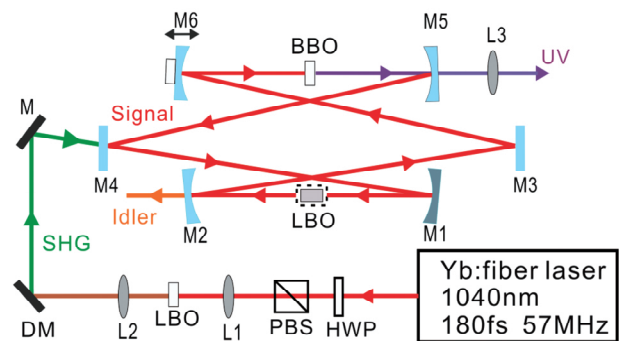


图 1 紫外可调谐飞秒 OPO 实验装置图^[18]

Fig. 1 Experimental setup of tunable UV femtosecond OPO^[18]

BBO 晶体的角度, 即可获得 330~442 nm 的可调谐紫外脉冲输出, 这是迄今为止光纤飞秒激光器泵浦 OPO 所获得的最短输出波长; 泵浦绿光功率为 3 W 时, 在紫外波段获得的平均功率均大于 100 mW, 最大功率在中心波长 402 nm 处获得, 为 364 mW, 对应泵浦绿光到紫外激光的能量转换效率为 12.3%。准相位匹配晶体的研制给波长调谐带来极大的便利, Samanta 等^[19]利用皮秒光纤激光器的倍频绿光泵浦 MgO:sPPLT 晶体, 结合 BIBO 晶体进行腔内倍频, 获得紫外 317~340.5 nm 的可调谐皮秒脉冲输出, 利用相同技术方案可以在飞秒领域获得紫外波段可调谐脉冲输出。

可见光波段飞秒激光可以应用于生物光子学、成像、光谱学、激光显示等诸多领域。如何实现可见光波段超短脉冲激光是超快激光研究领域的一个难题。2020 年, 厦门大学罗正钱教授课题组^[20]利用 Pr/Yb 共掺 ZBLAN 光纤作为增益介质, 实现了红光锁模脉冲输出。然而受限于光纤增益带宽, 其输出波长范围受限。来自丹麦的研究人员利用光纤中的切连科夫辐射获得连续可调谐可见光波段(414~612 nm)输出, 然而其输出功率仅为 5.5 mW^[21]。利用飞秒 OPO 结合腔内倍频和和频的方式, 可以有效地将腔内运转的高功率近红外信号光转换到可见光波段。2013 年, 本课题组利用 Yb 光子晶体光纤飞秒激光器作为泵浦光源, 构建了 PPLN-OPO, 其实验装置如图 2 所示, 获得了信号光波段(1450~2200 nm)可调谐脉冲输出, 进而利用腔内信号光在 BBO 晶体中进行倍频, 获得红光至近红外(716~970 nm)输出, 采用泵浦光与腔内高功率信号光进行和频, 获得最大输出功率为 694 mW、光谱调谐范围为 610~668 nm 的可见光波段脉冲输出, 其输出功率和光谱调谐范围如图 2(b)、(c) 所示^[22]。然而

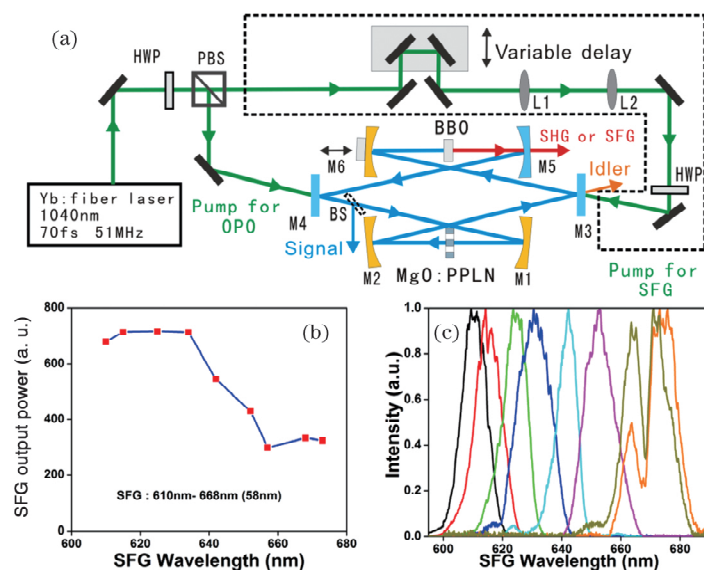


图 2 可见光可调谐飞秒 OPO 实验装置及结果^[22]。(a)实验装置;(b)输出功率随波长的变化曲线;(c)和频可见光光谱调谐

Fig. 2 Experimental setup of tunable visible femtosecond OPO and results^[22]. (a) Experimental setup; (b) SFG power varying with wavelength; (c) visible light spectrum tuning of SFG from 610 to 668 nm

可以看出,受相位匹配带宽的限制,输出脉冲仅局限在可见光部分波段范围,输出全可见光波段均可覆盖的飞秒 OPO 方案仍值得进一步探索。

中红外波段是指波长覆盖范围为 $2\sim 20\ \mu\text{m}$ 的波段范围^[23]。在光谱学研究领域,中红外波段位于分子“指纹”区域,诸多分子在此波段范围有较强的振动和转动能级跃迁,因此可以利用中红外激光对于重要分子的特征指纹进行甄别^[24]。在医疗领域,由于中红外波段包含水分子的吸收峰,利用中红外激光与人体组织相互作用时可以达到组织剥离的效果,实现定向切割,提高医疗精度^[25]。在国防和军事领域,飞机、坦克、导弹等军事武器的辐射波长在中红外波段,许多国家军事机构都在积极研究中红外激光的定向干扰技术。此外,中红外激光处于大气透明窗口,在空气中传输时受分子散射影响小,因此中红外激光可以应用于雷达、激光测距、遥感通信等方面^[26]。为满足广泛的应用需求,中红外激光源的发展极为迅速。其中,中红外超短脉冲激光具备光谱覆盖范围宽、脉冲持续时间短、峰值功率高的特点,在光谱学研究、高次谐波产生、材料加工等研究领域表现出独特的优势^[27]。近年来研究人员报道了大量基于 CSP 晶体的中红外飞秒 OPO,如图 3 所示,利用该晶体作为参量增益介质,结合常见的钛宝石激光器和掺 Yb 激光器, OPO 可以输出波长范围为 $6\sim 8\ \mu\text{m}$ 的中红外激光脉冲^[28]。AgGaSe 和 ZnGeP₂ (ZGP) 晶体的发明使得 OPO 输出波长可以达到 $10\ \mu\text{m}$ 以上^[29]。近年来,美国中佛罗里达大学

研究小组基于随机准相位匹配的多晶 ZnSe 晶体,利用 $2.35\ \mu\text{m}$ 激光作为泵浦光源,实现了直接输出光谱范围为 $3\sim 7.5\ \mu\text{m}$ 的中红外脉冲输出^[27]。2020 年,德国斯图加特大 Giessen 课题组^[30]结合 OPO、OPA 和 DFG 技术,在 GaSe 晶体中实现了波长为 $5\sim 15\ \mu\text{m}$ 的超宽带可调谐红外脉冲输出。

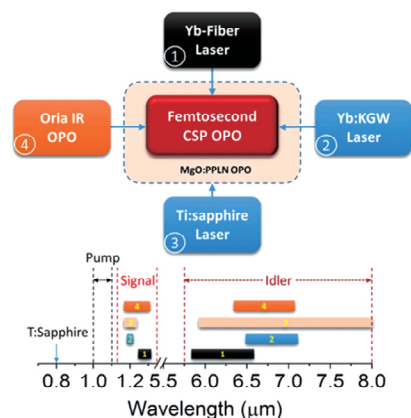


图 3 常见激光器泵浦的 CSP-OPO 及其输出波长范围^[29]

Fig. 3 Typical CSP-OPO pumped by laser and corresponding output wavelength range^[29]

事实上,OPO 技术的发展除了受限于泵浦激光技术和晶体制备技术,还依赖介质镜镀膜技术的发展。截至目前,镀膜介质镜几乎是 OPO 腔的必需品,得益于双色介质镜,泵浦光可以耦合进 OPO 腔,而信号光(或闲频光)可以在腔内实现振荡。特殊波段的宽带介质镜镀膜比较困难,价格昂贵。介质镜的镀膜技术成为中红外、远红外 OPO 的“阿喀琉斯之踵”,极大地限制了中远红外飞秒 OPO 的发

展。为了克服这个缺点,范锦涛等提出了如图 4 所示的无介质镜的超宽带可调谐飞秒 OPO 设计方案,该方案克服了 OPO 对于镀膜介质镜的依赖。受益于四棱镜系统,泵浦光可以耦合进入 OPO 腔,同时腔内信号光和闲频光可以选择性地实现振荡。基于此系统,仅通过调节腔镜位置,可实现信号光波段(1367 ~ 1914 nm)和闲频光波段(2152 ~ 4480 nm)的宽带可调谐输出。输出脉冲的平均功率在信号光范围最高可达 1.2 W,闲频光波段的最高输出平均功率为 411 mW^[31]。金镜和棱镜的可用光谱范围极宽,选择合适的泵浦光源和非线性晶体,则所设计的无介质镜 OPO 输出光谱可以很容易被拓宽到更宽覆盖范围。

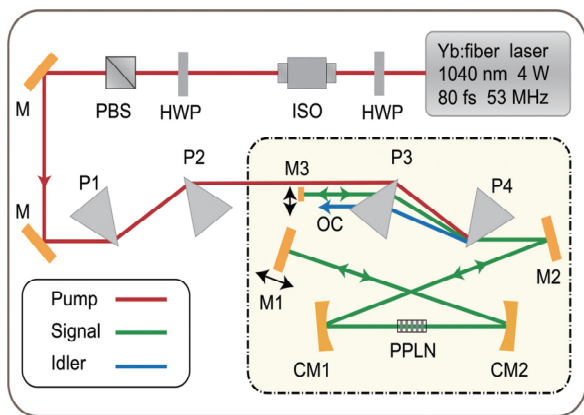


图 4 无介质镜飞秒 OPO 实验装置示意图^[31]

Fig. 4 Schematic illustration of experimental setup for dielectric-mirror-less femtosecond OPO^[31]

2.2 获得高平均功率/单脉冲能量

相较于钛宝石,光纤飞秒激光器有较长的增益介质,能实现更高的激光产生和放大效率,通过优化非线性传输过程,单根光纤输出的飞秒激光功率可以达到几十瓦到数百瓦量级。而高功率激光器的研制为高功率 OPO 的实现提供了良好的契机。如今,飞秒 OPO 的输出平均功率已经可以达到瓦量级。2012 年,德国莱布尼兹汉诺威大学 Lang 等^[32]报道了基于 BBO 晶体的 OPO,实现了波长调谐范围为 650 ~ 1200 nm、平均功率超过 3 W 的输出。2017 年,Coluccelli 等^[33]采用 Yb 激光器倍频光作为泵浦光,搭建了 BBO-OPO,通过管理腔色散,获得了最高功率为 1.1 W、脉冲宽度为 30 fs 的可调谐脉冲输出。目前报道的中红外波段飞秒 OPO 输出的最高平均功率可达数百毫瓦。国内高功率 Yb 激光器的迅速发展也为高功率 OPO 的搭建提供了良好的泵浦光源。2012 年,Stanley 搭建了 PPLN-

OPO,其腔内和频可见光波段的输出脉冲功率已高达 694 mW^[22]。2018 年,Fan 等^[34]通过采用较长的非线性晶体 PPLN,获得了信号光波段瓦量级脉冲输出;同年 Fan 等^[31]设计了棱镜泵浦无介质镜飞秒 OPO,其输出信号光的最高平均功率达 1.2 W。2016 年,Tian 等^[35]报道了可见光波段瓦量级输出的 BiB₃O₆-OPO;紧接着在 2018 年,此课题组报道了信号光功率为 2.32 W、中心波长为 1.55 μm 、对应闲频光功率为 1.31 W 的高功率 KTA-OPO^[36]。

原则上,超短脉冲泵浦的 OPO 只有在泵浦脉冲持续时间内可以获得参量增益,因此需要满足腔长匹配条件,而高单脉冲能量激光器的重复频率普遍不高,因此高单脉冲能量的飞秒 OPO 鲜有报道。目前飞秒 OPO 输出的最高单脉冲能量为 345 nJ, Petersen 等^[37]在 2016 年搭建的近红外 OPO 的重复频率为 7.08 MHz,输出光谱的调谐范围为 1.99 ~ 2.2 μm 。实际上,可以利用再生放大的方式获得高能激光脉冲输出,这一方法主要应用于固体激光器放大级中的高能脉冲产生和输出。2018 年,He 等^[38]将这一理念引入皮秒 OPO 中,其腔结构如图 5 所示,基于腔内泵浦的再生复合腔结构实现的输出脉冲重复频率为 10 kHz、脉冲能量高达 30.5 μJ ,这是当前超快 OPO 输出的最高能量指标。相信在不远的将来,该技术可以运用于飞秒 OPO 系统中,获得高能飞秒可调谐脉冲输出。

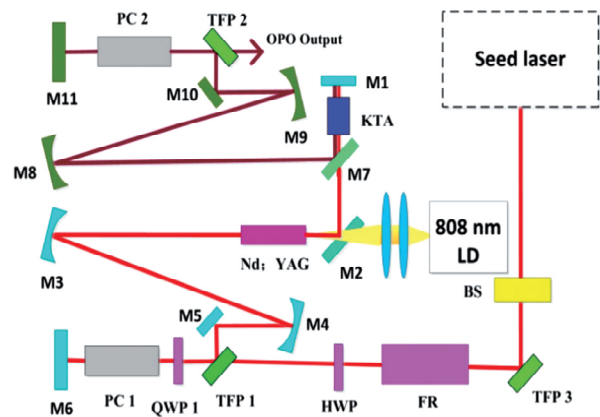


图 5 高能腔内泵浦再生式 ps-OPO 实验装置示意图^[38]

Fig. 5 Schematic illustration of experimental setup for high-energy regenerative ps-OPO using intracavity pumping^[38]

2.3 产生少周期脉冲

少周期飞秒激光脉冲是指脉冲持续时间在几个光学振荡周期的飞秒激光脉冲。少周期飞秒激光脉冲的时间持续宽度窄,对应的光谱覆盖范围宽。研究少周期激光脉冲与物质相互作用时,不仅要考虑

脉冲包络,而且要考虑载波包络相位的影响。随着研究人员对少周期脉冲研究的深入,自感应透明、载波拉比振荡和单周期孤子产生等现象被相继发现^[39-43]。另一方面,少周期激光脉冲也有利于高次谐波产生、强场物理、阿秒脉冲产生的研究^[44-46]。脉冲尺度的减小有利于人类对于微观世界的探索,也有助于人类认识分子及原子的内部运动。少周期脉冲产生一直是超快光学研究领域的热点和难点。2014 年,西班牙 ICFO 研究人员 Kumar 等^[47]采用 20 fs 克尔透镜锁模钛宝石激光器作为泵浦光源构建 OPO,获得中心波长在 2282 nm、脉冲宽度仅为 3.7 个光学周期的中红外脉冲输出。2015 年,McCracken 等^[48]同样采用钛宝石激光器作为泵浦源,搭建了 GHz 重复频率的近红外少周期 OPO。超短脉冲泵浦的 OPO 输出信号光/闲频光的光谱宽度与所使用泵浦激光器的光谱宽度相近,因此钛宝石激光器泵浦的 OPO 在输出少周期脉冲方面具有天然的优势。相比于钛宝石激光器,Yb 光纤飞秒激光器在输出功率、稳定性、鲁棒性等方面有着显著的优势,但受限于增益带宽,其所支持的脉冲宽度往往在百飞秒量级,这使得其泵浦的 OPO 输出脉冲宽度受到了很大限制。

针对这一问题,研究人员给出了不同的解决方案。2017 年,Coluccelli 等^[33]充分利用了较短 BBO 晶体中信号光与闲频光群速度失配很小这一特性,利用输出脉冲宽度为 140 fs 的 Yb 光纤飞秒激光器的倍频绿光泵浦长度仅为 1 mm 的 BBO 晶体并搭建 OPO 腔,获得了输出脉冲宽度仅为 30 fs、平均功率为 W 量级的可调谐近红外脉冲输出。华中科技大学刘沛等^[49]提出了啁啾脉冲光学参量振荡器(CPOPO)的理念,有效消除了飞秒激光器泵浦光谱宽度对于 OPO 光谱输出性能的限制。方案一是基于自相位调制(SPM)效应的 CPOPO,如图 6 所示,在 X 型线型腔 PPLN-OPO 一臂加入一块多晶 ZnSe 薄片,利用多晶 ZnSe 较大的非线性折射率提供足够强的 SPM 效应,以实现光谱展宽和脉冲啁啾。同时在腔内插入熔融石英片以调节腔色散,当腔内净色散为 156 fs^2 时,输出信号光光谱如图 7(a)所示,其 -30 dB 带宽可达 29 THz,可以覆盖 1420~1650 nm 光谱范围,去啁啾后脉冲宽度仅为 45 fs^[50]。方案二是基于啁啾准相位匹配(CQPM)机制的同步泵浦 OPO,采用啁啾 PPLN(CPPLN)构建 CPOPO,形成啁啾式信号光脉冲,实现宽谱输出^[51]。在 3 W 泵浦功率下,该方案获得了光谱覆盖

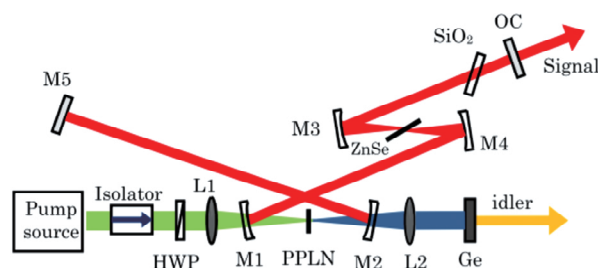


图 6 基于 SPM 效应的啁啾脉冲光学参量振荡器实验装置图^[50]

Fig. 6 Experimental setup of chirped-pulse OPO based on SPM effect^[50]

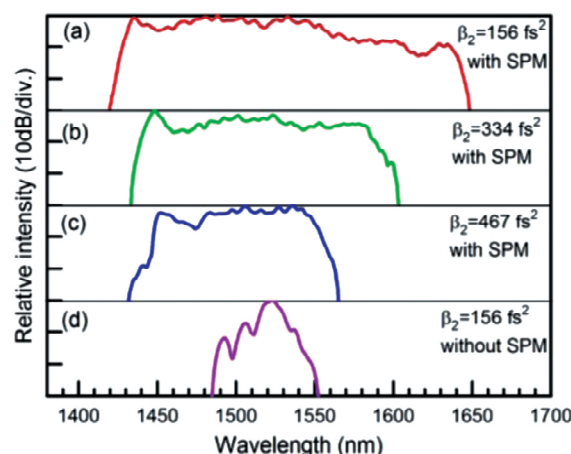
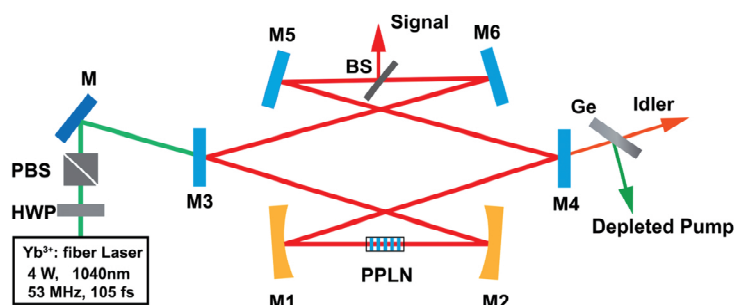
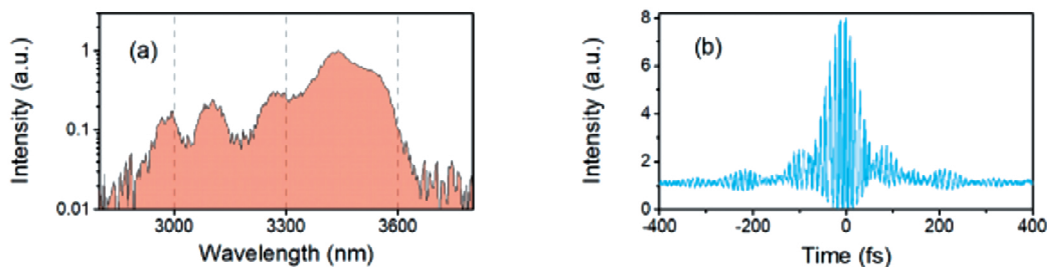


图 7 有无 SPM 效应时输出信号光光谱^[50]

Fig. 7 Output signal spectra with and without SPM effect^[50]

范围为 1293~1734 nm 的输出, -30 dB 光谱带宽高达 69 THz。

Fan 等^[34]将脉冲自压缩技术应用于光纤飞秒激光器泵浦的 OPO 中,获得了中红外 4.2 个光学周期脉冲输出。1994 年,Khaydarov 等^[52]首次将脉冲自压缩技术应用于同步泵浦皮秒 OPO 中,获得了泵浦光脉冲宽度与振荡信号光(闲频光)脉冲宽度之比接近 4、脉冲宽度为 2.5~3 ps 的可调谐脉冲输出。脉冲自压缩技术的工作原理是:对于每一个腔循环过程,振荡光脉冲都比泵浦光脉冲进入非线性晶体要稍晚一点,这样只有振荡光脉冲的前沿因可遇到泵浦光脉冲,而得到放大;反之,振荡光脉冲的后沿进入晶体时,泵浦光脉冲已经损耗掉,后沿得不到有效的放大;这样,经过一定次数的腔循环之后,稳定的窄化的振荡光脉冲得以形成。Fan 等将这一机制推广到百飞秒光纤激光器泵浦的 OPO 中,所设计的实验装置如图 8 所示,采用 5 mm 长 PPLN 晶体获得较大参量增益,以便于泵浦光前沿快速损耗掉,将腔色散调控至接近零。图 9(a)和 9(b)分别给出了注

图 8 脉冲自压缩飞秒 OPO 实验装置图^[34]Fig. 8 Experimental setup of self-compressed femtosecond OPO^[34]图 9 脉冲自压缩飞秒 OPO 输出闲频光光谱和双光子自相关^[34]Fig. 9 Measured idler spectra and two-photon autocorrelation of self-compressed femtosecond OPO^[34]

入泵浦光最大时对应的闲频光光谱和自相关曲线。闲频光输出光谱位于中红外波段，其中心波长为 3250 nm，光谱 -10 dB 带宽达 648 nm。根据光谱可计算得出对应变换极限脉冲宽度为 31 fs。测量得到脉冲宽度为 45.2 fs，对应中心波长 3250 nm 处 4.2 个光学周期。

2.4 获取高重复频率信号光脉冲

激光脉冲重复频率的提升会提高时间分辨光谱学、泵浦探测等系统的信噪比，也会使得通信系统的数据量和通信速率得到很大的提升。因此重复频率为 GHz 乃至 THz 的激光器系统是实现大容量通信、光学开关、光学互联和时钟分布等应用的关键技术^[53]，是激光研究领域的热点。基于同步泵浦或谐波泵浦的高重复频率 OPO 有着输出脉冲光谱可调谐的独特优势，为天文光谱校准、时间分辨光谱学和泵浦探测等方面的研究提供了前所未有的可能性^[54-56]，因此备受研究人员的青睐。而对于光纤飞秒激光器而言，其重复频率通常在几十到一百兆赫兹，这限制了同步泵浦 OPO 的输出重复频率。因而通常采用谐波泵浦的方式提升输出信号光脉冲的重复频率。目前技术方案包含谐波泵浦小型化环型腔 GHz-OPO、基于 Vernier 效应的谐波泵浦 GHz-OPO 和本课题组提出的 V 型腔小型化 GHz-OPO。

1) 谐波泵浦小型化环型腔 GHz-OPO。当 OPO 腔长为泵浦激光器腔长的 $1/N$ 时，其输出信

号光脉冲序列的重复频率提高为激光器重复频率的 N 倍。由于信号光脉冲与泵浦光脉冲并不完全同步，该方案也被称为谐波泵浦。2002 年，Jiang 等^[57]采用 84 MHz 的激光器作为泵浦光源，实现了 1 GHz 信号光脉冲输出，信号光脉冲的重复频率是泵浦光脉冲重复频率的 12 倍。2019 年，Meng 等^[58]利用 75.5 MHz 的 Yb 激光器倍频光作为泵浦光源构建 BIBO-OPO，获得了波长调谐范围为 693~1000 nm、重复频率为 755 MHz、最大输出功率为 1.34 W 的可调谐脉冲输出。次年，该课题组采用相同技术方案，将输出脉冲重复频率提升至 1.13 GHz^[59]。

2) 基于 Vernier 效应的谐波泵浦 GHz-OPO。OPO 腔长为泵浦激光源腔长的 $1+1/N$ 时，对应输出信号光脉冲的重复频率也可提升至泵浦激光器重复频率的 N 倍，具体原理如图 10 所示^[60]。2009 年，Esteban-Martin 等^[61]采用该方案报道了 1500~1540 nm 通信波段的可调谐 GHz-OPO，其泵浦激光器重复频率仅为 76 MHz。现在此 OPO 已经可以实现几十 GHz 乃至 THz 重复频率的激光输出^[62-64]。

3) V 型腔小型化 GHz-OPO。相比于环形腔，线型腔会使腔结构更加紧凑，系统环境稳定性得到提升。2018 年，Fan 等^[65]以重复频率为 53 MHz 的光纤飞秒激光放大器为泵浦光源，PPLN 为非线性晶体，提出了如图 11 所示的紧凑 V 型线型腔结构的设计方案，腔长仅为 13.9 cm，每一个泵浦光激发的

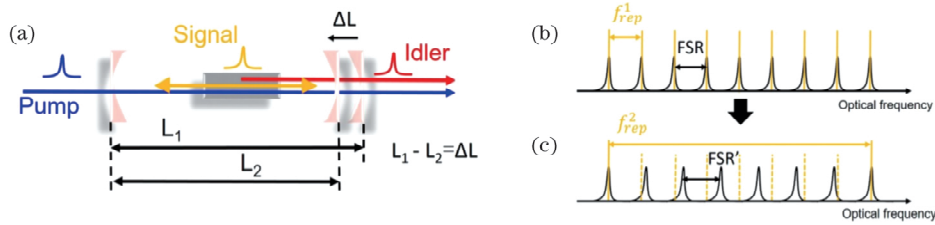


图 10 谐波泵浦实现高重复频率 OPO 原理示意图^[60]。(a)同步及谐波泵浦腔;(b)同步及(c)谐波泵浦情况下的脉冲序列

Fig. 10 Principle of high repetition rate OPO using harmonic pumping^[60]. (a) Synchronous and harmonic pumping cavity; pulse sequences for (b) synchronous and (c) harmonic pumping

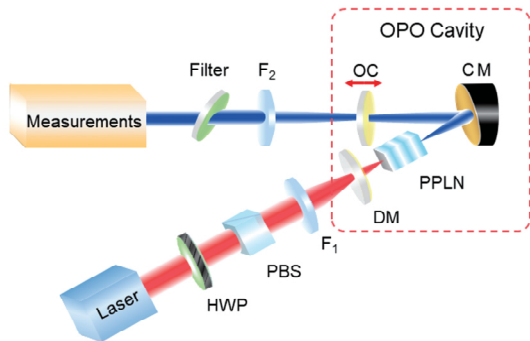


图 11 谐波泵浦 GHz-OPO 实验装置图^[65]

Fig. 11 Experimental setup of harmonically pumped GHz-OPO^[65]

信号光脉冲在腔内循环 20 圈后碰到下一个泵浦光脉冲而得到放大,最终形成稳态输出,得到重复频率为 1.07 GHz、光谱可覆盖通信波段的可调谐脉冲输出。次年,Chen 等^[66]提出了双向泵浦 GHz-OPO 的技术方案,有效地将信号光输出脉冲的平均功率提升至瓦量级。

2.5 实现波长可调谐矢量光束输出

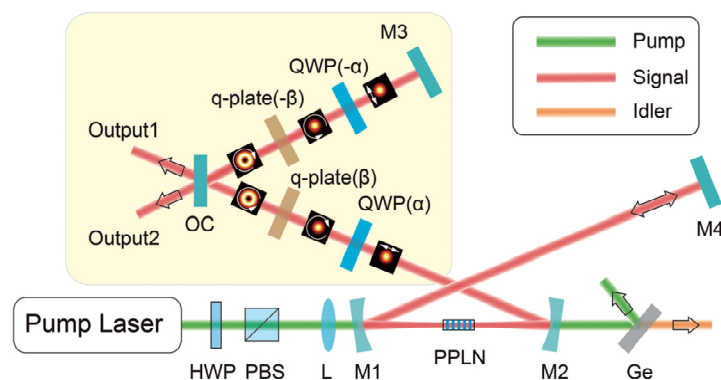
作为一种特殊结构的光场,矢量光场不仅具有波长、振幅、时间等自由度,还具备偏振态这一空间维度自由度。矢量光束具有独特的相位奇异性和近乎无衍射的传输特性,因此可以为微加工、超分辨成像、量子光学、光学微操控等领域提供巨大的发展机遇^[67-71]。近年来,与矢量光场相关的研究成果呈现井喷式增长,如何产生矢量光束这一课题受到国内外研究人员的广泛关注。原理上,矢量光束产生方式分为两大类:1)被动方法,即激光腔外转换产生;2)主动方法,即激光谐振腔直接产生。相比于被动方案,激光器直接产生矢量光束的方案具有结构简单、光束模式纯净度高的优点。2016 年,Naiddoo 等^[72]首次报道了连续光激光器可直接输出可控高阶庞加莱光束,通过改变腔内几何相位分布,可以直接从激光腔中产生不同偏振特性的庞加莱光束。最近,华东师范大学曾和平课题组^[73]基于光纤飞秒激

光器直接输出超快高阶庞加莱光束。但是,目前波长可调谐矢量光束的研究仍处于萌芽阶段。

2017 年,Aadhi 等^[74]首次将 OPO 技术与涡旋光束相结合,设计了基于涡旋光束泵浦的连续光 OPO,研究了轨道角动量(OAM)在 OPO 中的转换机制,成功将泵浦光所携带的 OAM 转换到信号光中,获得波长在 949.5~1209.7 nm 的可调谐涡旋光束。这项报道也打开了利用 OPO 产生可调谐涡旋光束的大门,随后该课题组相继报道了连续光、纳秒、皮秒涡旋光束 OPO^[75-77]。然而,受限泵浦机制,涡旋光束为甜甜圈状的空心光束,其参量转换效率与高斯光束相比较低,这限制了所设计 OPO 的输出功率。

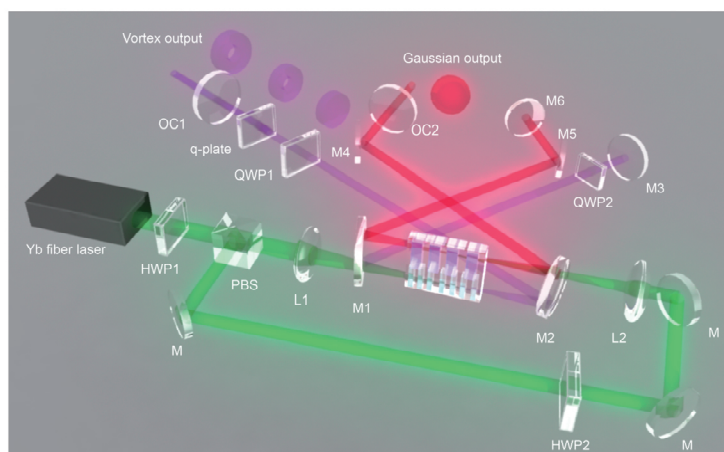
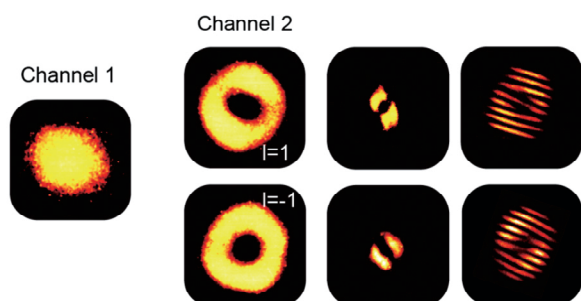
2019 年,Zhao 等^[78]提出了利用 Yb 光纤激光放大器输出高斯光泵浦的柱矢量光束飞秒 OPO,通过改变插入腔内的半波片和涡旋半波片角度,可以获得 1405~1601 nm 波长范围内可调谐的柱矢量光束信号光脉冲输出,在整个调谐范围内信号光脉冲宽度保持在 150 fs,1505 nm 处的最大输出功率为 614 mW。此外,通过改变腔内插入涡旋半波片的阶数,可以获得更高阶的可调谐柱矢量光束输出。次年,该课题组 Fan 等^[79]设计了输出偏振态可控、波长可调谐的飞秒高阶庞加莱光束 OPO。实验装置图如图 12 所示,利用 Yb 光纤飞秒激光器输出泵浦高斯光束作为泵浦光,在腔内引入的 QWP 和 q 波片(Thorlabs WPV10L-1550)的组合。通过调节 QWP 和 q 波片的角,可以实现任意状态的矢量涡旋光束偏振态输出。额外的一对 QWP 和 q 波片的插入,使得 OPO 腔内每个位置的偏振态在腔循环过程中保持不变。通过改变 PPLN 晶体周期,输出高阶庞加莱光束波长调谐范围可覆盖 1376~1626 nm,在整个光谱覆盖范围内信号光脉冲宽度为 110 fs 左右。

接着,Fan 等^[80]提出一种波长可调谐、光斑模式可控的新型双通道参量振荡器。与单通道可调

图 12 光纤飞秒激光器泵浦的庞加莱光束 OPO 实验装置图^[79]Fig. 12 Experimental setup of high order Poincaré (HOP) beam OPO pumped by Yb-doped femtosecond fiber laser^[79]

谐涡旋光束产生器相比,双通道涡旋光束产生器能够极大地提升信息传输容量,同时在可调谐太赫兹产生、粒子操控等领域有着巨大的潜在应用前景。此外,可同时输出高斯光束与涡旋光束的光源在超分辨成像领域有着广泛的应用。如图 13 所示,通过激发不同周期的单一准相位匹配周期极化铌酸锂晶

体,可以实现不同波长的独立输出;通过在腔内引入不同 q 波片,实现不同阶数的涡旋光束输出。得益于双通道的腔结构,通过调节每个通道的腔长度,可以获得独立的双通道宽光谱调谐输出,分别在 1520~1613 nm 和 1490~1549 nm 范围内对输出的信号光脉冲进行调谐,不同通道的光斑模式如图 14 所示。

图 13 双通道双模式 OPO 实验装置图^[80]Fig. 13 Experimental setup of two-channel dual beam mode OPO^[80]图 14 不同通道的输出光斑模式及其相应的瓣状结构和光斑干涉图样^[80]Fig. 14 Output speckle patterns of different channels and corresponding lobe structure and interference speckle patterns of vortex beams^[80]

除了上述 5 个方面外,光纤飞秒激光器泵浦的 OPO 也可实现双波长运转和波长快速调谐,为不同场景的应用提供了有力工具。双波长飞秒 OPO 是太赫兹脉冲产生、光谱计量等领域使用广泛的激光光源。2014 年,Gu 等^[81]设计了基于 LBO 晶体的双波长飞秒 OPO,通过在腔内引入棱镜对提供空间色散,将信号光分离,再利用两个独立反射镜构建单晶体双腔结构,从而实现双波长独立运转,并通过实验获得波长调谐范围分别为 680~730 nm 和 650~846 nm 的独立调谐的信号光脉冲输出。2020 年,该课题组 Zhao 等^[82]对系统进行改进,获得双波长、双模式独立可调谐结构光场信号光脉冲输出。

飞秒 OPO 波长调谐通常情况下依赖于相位匹

配条件的改变,诸如改变晶体角度、晶体温度以及晶体周期,而这些方案实现起来均需要较长时间,2012 年,德国汉诺威大学 Lang 等^[32]提出了基于非共线匹配的飞秒 OPO,充分利用 BBO 晶体的“魔术角”,实现宽带相位匹配,仅需改变 OPO 腔长,即可实现信号光脉冲在 650~1200 nm 的快速调谐,这为光谱学、泵浦探测等领域提供了无限可能。

3 基于飞秒光学参量振荡器的应用

3.1 激发纳米线频率上转换

纳米光子学是一门近些年发展非常迅速的新兴学科,主要涉及亚波长尺度下光与物质的相互作用机制,在分子传感器、纳米生物成像、量子光学等领域有着极高的应用和科研价值^[83]。其中,半导体纳米线是纳米光子学领域重要的元器件,具有纳米尺寸下的场增强效应和半导体材料的复合发光特性,在强激光作用下会表现出较高非线性系数,是实现频率上转换的良好材料^[84]。近年来,已经有诸多文献报道了半导体材料的二次谐波、高次谐波产生、荧光增强等非线性频率变换效应^[85-87]。飞秒 OPO 输出激光通常具有较高重复频率,具备波长可调谐、峰值功率高而平均功率低的特征,为纳米材料的

研究提供高光子密度的同时最大限度地保护样品不受破坏,因此飞秒 OPO 是研究纳米光子学的优良光源。

对于诸如 GaAs、ZnO 等非中心对称的半导体材料而言,二阶非线性效应产生的主要机制是在一定波长范围内与波长无关的非共振非线性过程,因此可以利用纳米线实现普通块状晶体无法实现的超宽带倍频光产生。2013 年,Zhang 等^[88]利用 Yb 激光器直接输出的 1040 nm 激光和该激光器泵浦的 PPLN-OPO 输出的 1416~1770 nm 可调谐激光共同激发 GaAs 纳米线,获得了宽带可调谐和频信号,并利用这一现象搭建脉冲宽度互相关测量系统,测量飞秒脉冲的脉冲宽度,测量误差仅为 2.4%。2019 年,Zhao 等^[89]报道了四足 ZnO 纳米棒中超宽带倍频效应,设计实验装置如图 15(a)所示,采用 PPLN-OPO 输出激光激发四足 ZnO,实验结果如图 15(b)、(c)所示,该方案获得了宽带可调谐倍频信号,并论证了四足 ZnO 纳米材料具有强的偏振选择效应。这两篇报道说明了 GaAs 和 ZnO 纳米材料具有良好的混频特性,也说明了飞秒 OPO 是研究纳米材料的优良光源,在纳米器件集成领域有着广泛的应用前景。

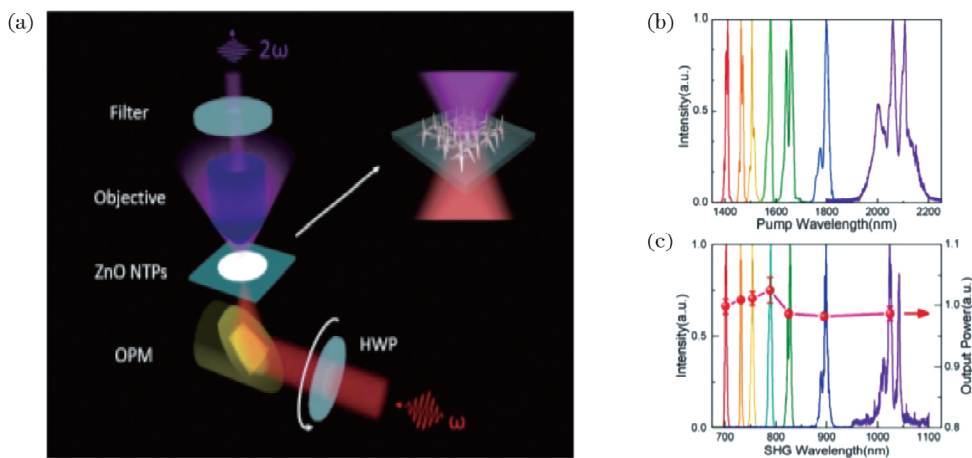


图 15 四足 ZnO 二次谐波激发实验装置图及其实验结果^[89]

Fig. 15 Experimental setup of SHG stimulation of nano-tetrapod ZnO and experimental results^[89]

3.2 拉曼光谱显微技术

相干拉曼散射(CRS)具有无标记、非侵入、高特异性的优良特性,是基于多光子散射的非线性过程,被广泛应用于生物医学、显微成像、化学结构检测等领域^[90]。随着研究的逐步深入,根据其非线性光学机制的不同,将 CRS 分为两种:相干反斯托克斯拉曼散射(CARS)和受激拉曼散射(SRS)。由于 CARS 和 SRS 都属于非线性光学范畴,需要使用超

短脉冲激光激发,因此虽然这两种现象早在 20 世纪 60 年代就被发现,但是将其真正作为显微成像技术进行推广是在 1999 年和 2008 年^[91]。这两种技术的共同之处是需要两束激光分别作为斯托克斯和泵浦光去进行激发,这样一来,OPO 几乎可以说是为 CRS 量身定制的光源,通过调节斯托克斯/泵浦光的波长还可以改变待测拉曼频率,选择性地探测不同的化学/生物分子。

2013 年, Hoffmann 等^[92] 基于非共线飞秒 OPO 搭建了快速采样的 SRS 系统, 得益于 OPO 的快速调谐能力和宽光谱覆盖特点, 实现了 $960 \sim 3400 \text{ cm}^{-1}$ 的宽拉曼光谱覆盖, 扫描更新速率为 19.6 Hz 。2019 年, 德国斯图加特大学 Giessen 课题组^[93] 搭建了如图 16 所示的相干拉曼成像系统, 利用 Yb 激光器输出的

1043 nm 激光作为斯托克斯光, 该激光器泵浦的 PPLN-OPO 输出信号光的倍频光作为泵浦光, 可以满足光谱覆盖范围为 $1015 \sim 3695 \text{ cm}^{-1}$ 的成像需求。受益于飞秒 OPO 良好的波长调谐特性和泵浦激光器的低噪声输出特性, 所研究的系统可以灵活地实现 CARS 和 SRS 的低噪声成像。

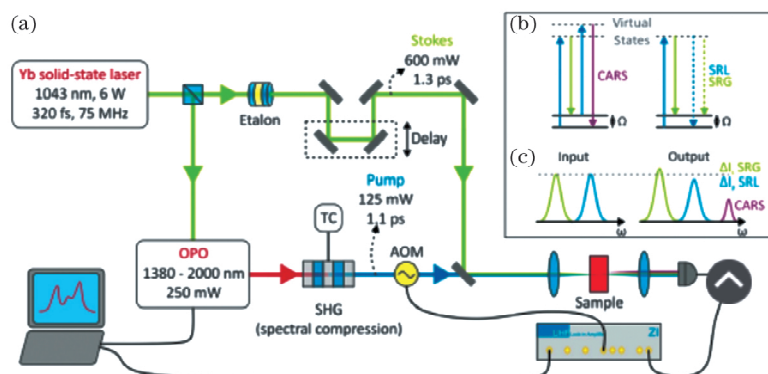


图 16 基于 Yb 激光系统及 OPO 的相干拉曼成像系统^[91]

Fig. 16 Coherent Raman imaging system based on Yb laser system and Yb-laser pumped OPO^[91]

事实上, 飞秒 OPO 的应用远不止以上两个领域, 其在光学频率梳、中红外气体检测、量子光学等领域发挥着重要的作用, 这里不一一列举。

4 结 论

与传统飞秒激光器相比, 光纤飞秒激光器泵浦的 OPO 在波长调谐方面的优势十分明显, 随着新型晶体性能的不不断提升和激光器输出功率的不断提高, OPO 将沿着输出功率不断提高、波长调谐范围不断拓宽的方向发展。由于谐振腔设计的多样性, 高能量、高重复频率飞秒 OPO 得到了广阔的发展空间。OPO 中新机制的发现和运用使光纤飞秒激光器泵浦的 OPO 输出光谱不断拓宽, 脉冲宽度不断变窄。此外, 泵浦光源的集成化和谐振腔结构的合理设计会使 OPO 更加紧凑, 易于实现小型化、工程化, 这是飞秒 OPO 未来发展的必然趋势。近年来, 研究人员成功研制了基于微腔的 OPO^[94]、无镜 OPO^[95], 其输出脉冲具备极高的重复频率、良好的波长调谐特性, 有利于微型光子集成, 具有成为片上系统的潜力, 未来在高速通信、量子光学等领域有着广阔的应用前景。与此同时, 飞秒 OPO 腔内动力学研究也在不断的丰富, OPO 腔中孤子形成、多孤子形成机制不断被探索 and 发现^[96-97]。此外, 光纤飞秒激光器泵浦的 OPO 以其良好的波长调谐特性, 在诸多应用领域中体现出越来越重要的地位和优势, 被广泛应用于光学频率梳、显微成像、纳米光子

学、生物医学等方向。然而需要指出的是, 当前飞秒光纤激光器泵浦的 OPO 的进一步发展仍然面临着不少挑战。在输出波长调谐范围方面, 输出短波范围被限制在了 330 nm , 如何进一步在极紫外、深紫外波段获取可调谐脉冲仍是研究难点; 而中红外脉冲输出波长覆盖范围虽然很宽, 但受限晶体透射光谱范围和相位匹配条件, 需要中红外飞秒脉冲进行泵浦, 开发和发展适用于 Yb 光纤飞秒激光器泵浦的中红外晶体仍需要大量的工作。在输出脉冲能量/功率方面, 由于飞秒 OPO 需要满足同步泵浦条件, 腔长不宜过长, 因此脉冲能量的进一步提升面临着挑战。在输出少周期脉冲方面, Yb 光纤增益带宽较窄, 脉冲宽度较宽, 如何利用较宽泵浦脉冲获取高功率、稳定的少周期激光脉冲仍然值得科研工作者进一步探索。在输出高重复频率脉冲方面, 腔长的失配带来了相邻脉冲之间强度并不相同的后果, 给飞秒 OPO 的应用带来了不便, 如何解决脉冲之间强度的不同是发展高重复频率飞秒 OPO 面临的卡脖子问题。相信随着科研工作者的不断努力, 光纤激光器及非线性晶体制备技术的发展会为飞秒 OPO 提供更多推力, 光纤飞秒激光器泵浦的 OPO 能够迎来更美好的明天, 且会更加实用化, 成为更具竞争力的激光光源。相信在各方面因素的促进之下, 光纤激光器泵浦的飞秒 OPO 的研究目前正处于飞速发展的时代, 其在未来应用中更是存在着无限的可能。

参 考 文 献

- [1] Boyd R W. Nonlinear optics[M]. 3rd ed. New York: Elsevier, 2003.
- [2] Franken P A, Hill A E, Peters C W, et al. Generation of optical harmonics[J]. Physical Review Letters, 1961, 7(4): 118-119.
- [3] Schliesser A, Picqué N, Hänsch T W. Mid-infrared frequency combs[J]. Nature Photonics, 2012, 6(7): 440-449.
- [4] Sotier F, Thomay T, Hanke T, et al. Femtosecond few-fermion dynamics and deterministic single-photon gain in a quantum dot[J]. Nature Physics, 2009, 5(5): 352-356.
- [5] Tian W L, Zhu J F, Wang Z H, et al. Optical parametric oscillators synchronously pumped by all-solid-state femtosecond lasers[J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(5): 0508015.
田文龙, 朱江峰, 王兆华, 等. 全固态飞秒激光同步抽运的光学参量振荡器[J]. 中国激光, 2019, 46(5): 0508015.
- [6] Reimer C, Kues M, Caspani L, et al. Cross-polarized photon-pair generation and bi-chromatically pumped optical parametric oscillation on a chip[J]. Nature Communications, 2015, 6: 8236.
- [7] Timmers H, Kowligy A, Lind A, et al. Molecular fingerprinting with bright, broadband infrared frequency combs[J]. Optica, 2018, 5(6): 727-732.
- [8] Edelstein D C, Wachman E S, Tang C L. Broadly tunable high repetition rate femtosecond optical parametric oscillator[J]. Applied Physics Letters, 1989, 54(18): 1728-1730.
- [9] Limpert J, Roser F, Schreiber T, et al. High-power ultrafast fiber laser systems[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2006, 12(2): 233-244.
- [10] Wang Q Y, Hu M L, Chai L. Progress in nonlinear optics with photonic crystal fibers[J]. Chinese Journal of Lasers, 2006, 33(1): 57-66.
王清月, 胡明列, 柴路. 光子晶体光纤非线性光学研究新进展[J]. 中国激光, 2006, 33(1): 57-66.
- [11] Yan D Y, Liu B W, Song H Y, et al. Research status and development trend of high power femtosecond fiber laser amplifiers[J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(5): 0508012.
闫东钰, 刘博文, 宋寰宇, 等. 高功率光纤飞秒激光放大器的研究现状与发展趋势[J]. 中国激光, 2019, 46(5): 0508012.
- [12] Ebrahim-Zadeh M, Kumar S C. Yb-fiber-laser-pumped ultrafast frequency conversion sources from the mid-infrared to the ultraviolet[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2014, 20(5): 624-642.
- [13] Kumar S C, Schunemann P G, Zawilski K T, et al. Advances in ultrafast optical parametric sources for the mid-infrared based on CdSiP₂[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2016, 33(11): D44-D56.
- [14] Krischek R, Wiczorek W, Ozawa A, et al. Ultraviolet enhancement cavity for ultrafast nonlinear optics and high-rate multiphoton entanglement experiments[J]. Nature Photonics, 2010, 4(3): 170-173.
- [15] Glezer E N, Milosavljevic M, Huang L, et al. Three-dimensional optical storage inside transparent materials[J]. Optics Letters, 1996, 21(24): 2023-2025.
- [16] Jayasinghe A K, Rohner J, Hutson M S. Holographic UV laser microsurgery[J]. Biomedical Optics Express, 2011, 2(9): 2590-2599.
- [17] Gu C L, Hu M L, Fan J T, et al. High power tunable femtosecond ultraviolet laser source based on an Yb-fiber-laser pumped optical parametric oscillator[J]. Optics Express, 2015, 23(5): 6181-6186.
- [18] Fan J T, Gu C L, Wang C, et al. Extended femtosecond laser wavelength range to 330 nm in a high power LBO based optical parametric oscillator[J]. Optics Express, 2016, 24(12): 13250-13257.
- [19] Samanta G K, Kumar S C, Aadhi A, et al. Yb-fiber-laser-pumped, high-repetition-rate picosecond optical parametric oscillator tunable in the ultraviolet[J]. Optics Express, 2014, 22(10): 11476-11487.
- [20] Zou J, Dong C, Wang H, et al. Towards visible-wavelength passively mode-locked lasers in all-fibre format[J]. Light, Science & Applications, 2020, 9: 61.
- [21] Liu X M, Laegsgaard J, Iegorov R, et al. Nonlinearity-tailored fiber laser technology for low-noise, ultra-wideband tunable femtosecond light generation[J]. Photonics Research, 2017, 5(6): 750-761.
- [22] Stanley R. Plasmonics in the mid-infrared[J]. Nature Photonics, 2012, 6(7): 409-411.
- [23] Fang Y R, Ge Y Q, Wang C, et al. Mid-infrared photonics using 2D materials: status and challenges[J]. Laser & Photonics Reviews, 2020, 14(1): 1900098.
- [24] Petrich W. Mid-infrared and Raman spectroscopy for medical diagnostics[J]. Applied Spectroscopy Reviews, 2001, 36(2/3): 181-237.
- [25] Bureau B, Boussard C, Cui S, et al. Chalcogenide optical fibers for mid-infrared sensing[J]. Optical Engineering, 2014, 53(2): 027101.

- [26] Sheehy B, Martin J D D, DiMauro L F, et al. High harmonic generation at long wavelengths[J]. *Physical Review Letters*, 1999, 83(25): 5270.
- [27] Kumar S C, Krauth J, Steinmann A, et al. High-power femtosecond mid-infrared optical parametric oscillator at 7 μm based on CdSiP_2 [J]. *Optics Letters*, 2015, 40(7): 1398-1401.
- [28] Boyko A A, Marchev G M, Petrov V, et al. Intracavity-pumped, cascaded AgGaSe_2 optical parametric oscillator tunable from 5.8 to 18 μm [J]. *Optics Express*, 2015, 23(26): 33460-33465.
- [29] Ru Q T, Lee N, Chen X, et al. Optical parametric oscillation in a random polycrystalline medium [J]. *Optica*, 2017, 4(6): 617-618.
- [30] Mörz F, Steinle T, Linnenbank H, et al. Alignment-free difference frequency light source tunable from 5 to 20 μm by mixing two independently tunable OPOs [J]. *Optics Express*, 2020, 28(8): 11883-11891.
- [31] Fan J T, Gu C L, Zhao J, et al. Dielectric-mirror-less femtosecond optical parametric oscillator with ultrabroad-band tunability[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(10): 2316-2319.
- [32] Lang T, Binhammer T, Rausch S, et al. High power ultra-widely tuneable femtosecond pulses from a non-collinear optical parametric oscillator (NOPO) [J]. *Optics Express*, 2012, 20(2): 912-917.
- [33] Coluccelli N, Viola D, Kumar V, et al. Tunable 30 fs light pulses at 1 W power level from a Yb-pumped optical parametric oscillator [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(21): 4545-4548.
- [34] Fan J T, Gu C L, Liao R Y, et al. High power 4.2-cycle mid-infrared pulses from a self-compression optical parametric oscillator [J]. *IEEE Photonics Journal*, 2018, 10(6): 1-7.
- [35] Tian W L, Wang Z H, Meng X H, et al. High-power, widely tunable, green-pumped femtosecond BiB_3O_6 optical parametric oscillator [J]. *Optics Letters*, 2016, 41(21): 4851-4854.
- [36] Meng X, Wang Z, Tian W, et al. Watt-level widely tunable femtosecond mid-infrared KTiOAsO_4 optical parametric oscillator pumped by a 1.03 μm Yb: KGW laser[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(4): 943-946.
- [37] Petersen T, Zuegel J D, Bromage J. High-energy infrared femtosecond optical parametric oscillator synchronously pumped by a thin-disk laser [C] // *Advanced Solid State Lasers 2016*, October 30-November 3, 2016, Boston, Massachusetts, United States. Washington, D.C.: OSA, 2016: ATu1A.6.
- [38] He L J, Liu K, Bo Y, et al. 30.5- μm , 10-kHz, picosecond optical parametric oscillator pumped synchronously and intracavity by a regenerative amplifier[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(3): 539-542.
- [39] Wegener M. *Extreme nonlinear optics: an introduction*[M]. Heidelberg: Springer, 2005.
- [40] Jha P K, Eleuch H, Rostovtsev Y V. Coherent control of atomic excitation using off-resonant strong few-cycle pulses [J]. *Physical Review A*, 2010, 82(4): 045805.
- [41] Mücke O D, Tritschler T, Wegener M, et al. Role of the carrier-envelope offset phase of few-cycle pulses in nonperturbative resonant nonlinear optics [J]. *Physical Review Letters*, 2002, 89(12): 127401.
- [42] Lin Y Y, Chen I H, Lee R K. Few-cycle self-induced-transparency solitons [J]. *Physical Review A*, 2011, 83(4): 043828.
- [43] Leblond H, Mihalache D. Models of few optical cycle solitons beyond the slowly varying envelope approximation [J]. *Physics Reports*, 2013, 523(2): 61-126.
- [44] Wang Q, Ge S, Li X, et al. Valley carrier dynamics in monolayer molybdenum disulfide from helicity-resolved ultrafast pump-probe spectroscopy [J]. *ACS Nano*, 2013, 7(12): 11087-11093.
- [45] Apolonski A, Poppe A, Tempea G, et al. Controlling the phase evolution of few-cycle light pulses [J]. *Physical Review Letters*, 2000, 85(4): 740-743.
- [46] Niikura H, Légaré F, Hasbani R, et al. Sub-laser-cycle electron pulses for probing molecular dynamics [J]. *Nature*, 2002, 417(6892): 917-922.
- [47] Kumar S C, Esteban-Martin A, Ideguchi T, et al. Few-cycle, broadband, mid-infrared optical parametric oscillator pumped by a 20-fs Ti: sapphire laser [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2014, 8(5): L86-L91.
- [48] McCracken R A, Reid D T. Few-cycle near-infrared pulses from a degenerate 1 GHz optical parametric oscillator [J]. *Optics Letters*, 2015, 40(17): 4102-4105.
- [49] Liu P, Heng J X, Zhang Z W. Chirped-pulse optical parametric oscillators and the generation of broadband midinfrared laser sources [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2020, 49(12): 20201051.
- 刘沛, 衡家兴, 张兆伟. 啁啾脉冲光学参量振荡器及宽谱中红外激光的产生 [J]. *红外与激光工程*, 2020, 49(12): 20201051.
- [50] Liu P, Zhang Z W. Chirped-pulse optical parametric oscillators [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(19): 4735-4738.
- [51] Liu P, Heng J, Zhang Z. Chirped-pulse generation from optical parametric oscillators with an aperiodic quasi-phase-matching crystal [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(9): 2568-2571.

- [52] Khaydarov J D V, Andrews J H, Singer K D. Pulse compression in a synchronously pumped optical parametric oscillator from group-velocity mismatch [J]. *Optics Letters*, 1994, 19(11): 831-833.
- [53] Weingarten K J, Rodwel M J W, Bloom D M. Picosecond optical sampling of GaAs integrated circuits[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1988, 24(2): 198-220.
- [54] Steinmetz T, Wilken T, Araujo-Hauck C, et al. Laser frequency combs for astronomical observations [J]. *Science*, 2008, 321(5894): 1335-1337.
- [55] Drescher M, Hentschel M, Kienberger R, et al. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy [J]. *Nature*, 2002, 419(6909): 803-807.
- [56] Bartels A, Dekorsy T, Kurz H. Femtosecond Ti:sapphire ring laser with a 2-GHz repetition rate and its application in time-resolved spectroscopy [J]. *Optics Letters*, 1999, 24(14): 996-998.
- [57] Jiang J, Hasama T. Harmonic repetition-rate femtosecond optical parametric oscillator[J]. *Applied Physics B*, 2002, 74(4/5): 313-317.
- [58] Meng X H, Wang Z H, Tian W L, et al. 515 nm pumped femtosecond optical parametric oscillator at 755 MHz based on BiB_3O_6 [J]. *Applied Physics B*, 2019, 125(11): 1-6.
- [59] Song J J, Meng X H, Wang Z H, et al. Harmonically pump a femtosecond optical parametric oscillator to 1.13 GHz by a femtosecond 515 nm laser [J]. *Chinese Optics Letters*, 2020, 18(3): 033201.
- [60] Jin Y, Cristescu S M, Harren F J M, et al. Tunable high repetition rates femtosecond pulses from an optical parametric oscillator [C] // *Mid-Infrared Coherent Sources 2016*, 20-22 March 2016, Long Beach, California, United States. Washington, D.C.: OSA, 2016; MS3C.7.
- [61] Esteban-Martin A, Kokabee O, Moutzouris K, et al. High-harmonic-repetition-rate, 1 GHz femtosecond optical parametric oscillator pumped by a 76 MHz Ti:sapphire laser[J]. *Optics Letters*, 2009, 34(4): 428-430.
- [62] Kimmelma O, Kumar S C, Esteban-Martin A, et al. Multi-gigahertz picosecond optical parametric oscillator pumped by 80-MHz Yb-fiber laser [J]. *Optics Letters*, 2013, 38(22): 4550-4553.
- [63] Kokabee O, Esteban-Martin A, Ebrahim-Zadeh M. Efficient, high-power, 16-GHz, picosecond optical parametric oscillator pumped by an 81-MHz fiber laser[C] // *Conference on Lasers and Electro-Optics 2010*, May 16-21, 2010, San Jose, California, United States. Washington, D. C.: OSA, 2010; CThP2.
- [64] Tian W L, Wang Z H, Zhu J F, et al. Harmonically pumped femtosecond optical parametric oscillator with multi-gigahertz repetition rate [J]. *Optics Express*, 2016, 24(26): 29814-29821.
- [65] Fan J T, Chu Y X, Shi H S, et al. Compact V-type cavity for harmonically pumped 1-GHz femtosecond optical parametric oscillator [J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2018, 30(24): 2159-2162.
- [66] Chen Y X, Fan J T, Yang W K, et al. 910-MHz, watt-level, signal-power-enhanced, compact femtosecond optical parametric oscillator based on bidirectional pumping technique[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(7): 1638-1641.
- [67] Cardano F, Karimi E, Slussarenko S, et al. Polarization pattern of vector vortex beams generated by q-plates with different topological charges [J]. *Applied Optics*, 2012, 51(10): C1-C6.
- [68] Wang X L, Ding J P, Ni W J, et al. Generation of arbitrary vector beams with a spatial light modulator and a common path interferometric arrangement[J]. *Optics Letters*, 2007, 32(24): 3549-3551.
- [69] Marrucci L, Manzo C, Paparo D. Optical spin-to-orbital angular momentum conversion in inhomogeneous anisotropic media [J]. *Physical Review Letters*, 2006, 96(16): 163905.
- [70] Rosales-Guzmán C, Ndagano B, Forbes A. A review of complex vector light fields and their applications [J]. *Journal of Optics*, 2018, 20(12): 123001.
- [71] Shen Y J, Wang X J, Xie Z W, et al. Optical vortices 30 years on: OAM manipulation from topological charge to multiple singularities[J]. *Light: Science & Applications*, 2019, 8: 90.
- [72] Naidoo D, Roux F S, Dudley A, et al. Controlled generation of higher-order Poincaré sphere beams from a laser[J]. *Nature Photonics*, 2016, 10(5): 327-332.
- [73] Huang K, Zeng J, Gan J W, et al. Controlled generation of ultrafast vector vortex beams from a mode-locked fiber laser[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(16): 3933-3936.
- [74] Aadhi A, Samanta G K, Kumar S C, et al. Controlled switching of orbital angular momentum in an optical parametric oscillator[J]. *Optica*, 2017, 4(3): 349-355.
- [75] Aadhi A, Sharma V, Singh R P, et al. Continuous-wave, singly resonant parametric oscillator-based mid-infrared optical vortex source[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(18): 3674-3677.
- [76] Sharma V, Kumar S C, Samanta G K, et al. Orbital angular momentum exchange in a picosecond optical parametric oscillator[J]. *Optics Letters*, 2018, 43

- (15): 3606-3609.
- [77] Aadhi A, Sharma V, Samanta G K. High-power, continuous-wave, tunable mid-IR, higher-order vortex beam optical parametric oscillator[J]. Optics Letters, 2018, 43(10): 2312-2315.
- [78] Zhao J, Fan J T, Liao R Y, et al. High-power femtosecond cylindrical vector beam optical parametric oscillator[J]. Optics Express, 2019, 27(23): 33080-33089.
- [79] Fan J T, Xiao N, Zhao J, et al. Controlled generation of wavelength-tunable higher order poincaré sphere beams from a femtosecond optical parametric oscillator[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2020, 26(6): 1-5.
- [80] Fan J T, Zhao J, Shi L P, et al. Two-channel, dual-beam-mode, wavelength-tunable femtosecond optical parametric oscillator[J]. Advanced Photonics, 2020, 2(4): 045001.
- [81] Gu C, Hu M, Fan J, et al. High-power, dual-wavelength femtosecond LiB_3O_5 optical parametric oscillator pumped by fiber laser[J]. Optics Letters, 2014, 39(13): 3896-3899.
- [82] Zhao J, Fan J T, Tian H C, et al. Dual-mode and two-signal-wavelength femtosecond optical parametric oscillator based on LiB_3O_5 [J]. Optics Letters, 2020, 45(14): 3985-3988.
- [83] Sun Q, Zu S, Ueno K, et al. Applications of ultrafast photoemission electron microscopy in nanophotonics [J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(5): 0508001.
孙泉, 祖帅, 上野贡生, 等. 超快光电子显微技术在纳米光子学中的应用[J]. 中国激光, 2019, 46(5): 0508001.
- [84] Zhang X Q. Research on second-order nonlinear optical properties of semiconductor nanowires based on femtosecond lasers [D]. Tianjin: Tianjin University, 2014.
张晓青. 基于飞秒激光的半导体纳米线二阶非线性光学效应研究[D]. 天津: 天津大学, 2014.
- [85] Bautista G, Mäkitalo J, Chen Y, et al. Second-harmonic generation imaging of semiconductor nanowires with focused vector beams [J]. Nano Letters, 2015, 15(3): 1564-1569.
- [86] Han S, Kim H, Kim Y W, et al. High-harmonic generation by field enhanced femtosecond pulses in metal-sapphire nanostructure [J]. Nature Communications, 2016, 7: 13105.
- [87] Janisch C, Wang Y, Ma D, et al. Extraordinary second harmonic generation in tungsten disulfide monolayers[J]. Scientific Reports, 2014, 4: 5530.
- [88] Zhang X Q, He H, Fan J T, et al. Sum frequency generation in pure zinc-blende GaAs nanowires[J]. Optics Express, 2013, 21(23): 28432-28437.
- [89] Zhao J, Fan J T, Liu W, et al. Ultra-broadband second-harmonic generation in ZnO nano-tetrapod with over-one-octave bandwidth[J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2019, 31(3): 250-252.
- [90] Camp Jr C H, Cicerone M T. Chemically sensitive bioimaging with coherent Raman scattering [J]. Nature Photonics, 2015, 9(5): 295-305.
- [91] Linnenbank H, Steinle T, Mörz F, et al. Robust and rapidly tunable light source for SRS/CARS microscopy with low-intensity noise [J]. Advanced Photonics, 2019, 1(5): 055001.
- [92] Hoffmann C, Lang T, Morgner U. Stimulated Raman scattering with a rapidly tunable non-collinear optical parametric oscillator[C]//2013 Conference on Lasers & Electro-Optics Europe & International Quantum Electronics Conference CLEO EUROPE/IQEC, May 12-16, 2013, Munich, Germany. New York: IEEE Press, 2013.
- [93] Linnenbank H, Steinle T, Mörz F, et al. Robust and rapidly tunable light source for SRS/CARS microscopy with low-intensity noise [J]. Advanced Photonics, 2019, 1(5): 055001.
- [94] Kuramochi E. Photonic-crystal optical parametric oscillator[J]. Nature Photonics, 2021, 15(1): 2-4.
- [95] Khurgin J B. Mirrorless magic[J]. Nature Photonics, 2007, 1(8): 446-447.
- [96] O'Donnell C F, Kumar S C, Paoletta T, et al. Widely tunable femtosecond soliton generation in a fiber-feedback optical parametric oscillator [J]. Optica, 2020, 7(5): 426-433.
- [97] Nie M M, Huang S W. Quadratic soliton mode-locked degenerate optical parametric oscillator[J]. Optics Letters, 2020, 45(8): 2311-2314.

Research Progress on Fiber Laser-Pumped Femtosecond Optical Parametric Oscillators

Hu Minglie*, Wang Jue, Fan Jintao

*Ultrafast Laser Laboratory & Key Laboratory of Optoelectronic Information Technology (Ministry of Education),
School of Precision Instrument and Optoelectronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China*

Abstract

Significance Since the first demonstration of the Kerr-lens-mode-locked Ti:sapphire laser, femtosecond laser technology has attracted tremendous research interest and evolved very rapidly. Thanks to the properties of short pulse duration, broadband spectrum, and high peak power, femtosecond laser pulses can probe the high-resolution dynamics in both time and spatial dimensions, and explore new regimes of light-matter interaction. Contributing to these advantages, femtosecond laser systems could serve as powerful and reliable platforms for many cutting-edge applications, such as material processing, frequency comb generation, metrology, microscopy, spectroscopy, and nanooptics. Apart from many application fields, femtosecond laser technology has led to many breakthroughs in fundamental research fields, including attoscience, femtochemistry, and nonlinear optics. Developments in pump diodes, gain media, and saturable absorber mechanisms advance the frontiers of pulse duration and output power. Up to now, extremely short duration of pulses down to a few-optical-cycles can be achieved both directly from the oscillator and nonlinear processes outside the cavity. On the other hand, the output power level of the femtosecond laser system can reach several hundred watts. In recognition of the role of the femtosecond laser technique, Mourou and Strickland won the Nobel Prize in 2018 for chirped-pulse amplification. Apart from advancement to shorter pulse duration and higher output power, more and more research focuses are placed on ongoing efforts to expand the frequency coverage to promote femtosecond laser systems into more widespread practical applications. However, the mode-locked spectral width of femtosecond laser output is limited by the effective laser gain bandwidth due to the relatively fixed energy levels of the gain medium, which hinders its large-scale application.

Nonlinear frequency conversion techniques can provide the possibility to achieve effectively tunable laser sources in a wide spectral region. Up to date, the optical parametric oscillator (OPO) has emerged as a compelling alternative to generate broadband tunable radiation, which can expand the spectral region from the UV to infrared. Among them, OPOs pumped by femtosecond fiber lasers have been recognized as ideal platforms providing tunable ultrafast pulses with formidable performance, such as high repetition rate, high output power, and broad wavelength coverage. To this end, femtosecond OPOs are appealing for numerous applications, including quantum information, laser processing, optical frequency comb generation, and biophotonics. Recent power scaling of the Yb-fiber lasers and the development of new nonlinear crystals advance the frontiers of femtosecond OPOs.

Progress To fulfill more widespread applications, there remains a strong motivation to expand the spectral tuning possibilities of OPOs. The development of birefringent crystals such as BIBO, BBO, and LBO, combined with a powerful femtosecond fiber laser source, enables the generation of tunable UV radiation on an ultrafast time scale (Fig. 1). Alternatively, thanks to the unique material properties of mid-infrared materials, i.e., CSP, OP-GAP, and ZGP, the operation of femtosecond OPOs in the far-infrared at 8 μm can be realized (Fig. 3).

Kerr-lens-mode-locked Ti:sapphire lasers are the most commonly used pump sources for OPOs; however, these systems suffer a limitation in terms of power scaling mainly owing to unavoidable heat load in the laser crystal. In recent years, the rapid development of a high-power Yb-laser system allows a new power scaling potential for OPOs, and W level signal output can be achieved. However, it is rather difficult for OPOs to achieve a few-cycle pulse duration directly from a femtosecond fiber laser owing to the gain bandwidth limitation and complex nonlinear control. To access even shorter pulses from OPOs pumped by a fiber laser system, chirped-pulse optical parametric oscillators and self-compressed MIR OPOs have been demonstrated by researchers in Huazhong University of Science & Technology and Tianjin University, respectively (Fig. 7 and Fig. 9).

For high-speed electrooptic sampling or future optical communication applications, moving operation regime of OPOs into the gigahertz pulse repetition rate regime has advantages. OPOs operating at GHz repetition rates have been reported using both synchronous and harmonic pumping schemes.

Light emission with space-variant polarization and phase distribution has become a popular topic for the research community. The development of methods to create wavelength-tunable, space-variant polarization light beams will be a very interesting topic. Hu's research group in Tianjin University has demonstrated novel femtosecond OPOs that deliver high-order Poincaré sphere beams, cylindrical vector beams, and vortex beams (Figs. 12–14).

Conclusions and Prospect In this paper, we start with the progress in Yb-doped fiber laser-pumped femtosecond OPOs in recent years. Then, we present a variety of advanced designs of fiber laser-pumped OPOs, which are categorized into widely tunable OPOs, GHz repetition rate OPOs, few-cycle optical pulse OPOs, and structured beam OPOs. Finally, the applications of femtosecond OPOs in the fields of nanophotonics and Raman spectroscopy are introduced. With further development in nonlinear materials, combined with advances in pump laser technology, as well as new design concepts, femtosecond OPOs with wider spectral coverage, higher power, higher repetition rate, and shorter pulse duration are achievable in the near future. With the growth of novel femtosecond OPOs, completely new areas in application fields will arise.

Key words nonlinear optics; optical parametric oscillator; fiber femtosecond laser; few-cycle optical pulse; structure optical field; nanophotonics

OCIS codes 190.7710; 320.7110; 190.4970; 300.6450