

引用格式: SUN Hao, TIAN Wenlong, WANG Bowen, et al. High Beam Quality Third Harmonic Generation with All-solid-state Femtosecond Laser (Invited)[J]. Acta Photonica Sinica, 2021, 50(10):1014001

孙浩,田文龙,王博文,等. 全固态飞秒激光高光束质量三倍频研究(特邀)[J]. 光子学报, 2021, 50(10):1014001

全固态飞秒激光高光束质量三倍频研究(特邀)

孙浩¹, 田文龙¹, 王博文¹, 于兆磊³, 朱江峰¹, 魏志义²

(1 西安电子科技大学 物理与光电工程学院, 西安 710071)

(2 中国科学院物理研究所 北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100190)

(3 烟台恩邦电子科技有限公司, 山东 烟台 264006)

摘 要: 对全固态飞秒激光三倍频产生高光束质量 343 nm 飞秒激光进行了系统研究。基频光源为脉冲宽度为 105 fs、重复频率为 76 MHz、中心波长为 1 030 nm 的商用 Yb:KGW 锁模激光器, 利用 1.7 mm 长 LBO 晶体获得 60% 的二倍频转换效率, 然后分别研究了基于 BBO 晶体 II 类相位匹配和 I 类相位匹配的三倍频产生。在基频光功率为 5 W 的条件下, 利用 II 类相位匹配的 BBO 晶体, 获得的最大平均功率为 0.71 W, 三倍频转换效率约为 14%; 利用 I 类相位匹配的 BBO 晶体, 获得平均功率为 1.01 W 的紫外激光输出, 三倍频转换效率为 20.2%。获得的 343 nm 紫外激光的光束质量优于 1.3。

关键词: 非线性频率变换; 全固态飞秒激光; 三倍频; 紫外激光

中图分类号: TN248

文献标识码: A

doi: 10.3788/gzxb20215010.1014001

High Beam Quality Third Harmonic Generation with All-solid-state Femtosecond Laser (Invited)

SUN Hao¹, TIAN Wenlong¹, WANG Bowen¹, YU Zhaolei³, ZHU Jiangfeng¹, WEI Zhiyi²

(1 School of Physics and Optoelectronic Engineering, Xidian University, Xi'an 710071, China)

(2 Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

(3 Yan tai En Bang Electronic Technology Co., Ltd., Yantai, Shandong 264006, China)

Abstract: The generation of 343 nm femtosecond laser with high beam quality by the third harmonic generation of an all solid state femtosecond laser was reported. The fundamental harmonic is a commercial Yb:KGW mode-locked laser with a pulse duration of 105 fs, a repetition rate of 76 MHz and a central wavelength of 1 030 nm. Firstly, the second harmonic radiation is achieved with 60% optical-to-optical (1 030 to 515 nm) conversion efficiency. Then, the third harmonic generation based on type II and type I phase-matching BBO crystals are studied respectively. With the type II phase-matching BBO, the maximum output power of 0.71 W is achieved under the fundamental power of 5 W, which corresponding to the optical-to-optical conversion efficiency of ~14%. The ultraviolet output power of 1.01 W is obtained corresponding to an optical-to-optical (1 030 to 343 nm) conversion efficiency of 20.2% with type I phase-matching BBO. The beam quality of the high power ultraviolet laser at 343 nm is better than 1.3.

Key words: Nonlinear frequency conversion; All solid state femtosecond laser; Third harmonic generation; Ultraviolet laser

OCIS Codes: 140.3580; 190.7110; 190.2620; 140.7240

基金项目: 国家自然科学基金(Nos.61705174, 11774277), 陕西省自然科学基金基础研究计划(No.2019JCW-03), 中央高校基本科研业务费(No.ZD2006)

第一作者: 孙浩(1998—), 男, 硕士研究生, 主要研究方向为可见光飞秒光参量振荡器。Email: 350129553@qq.com

通讯作者: 田文龙(1990—), 男, 副教授, 博士, 主要研究方向为超快激光技术与太赫兹波。Email: wltian@xidian.edu.cn

朱江峰(1980—), 男, 教授, 博士, 主要研究方向为超快激光技术。Email: jfzhu@xidian.edu.cn

收稿日期: 2021-07-21; 录用日期: 2021-08-30

<http://www.photon.ac.cn>

0 引言

自1960年梅曼实现了第一台激光器运转,激光作为一种优质的光源,因其具有高单色性、高相干性、高方向性和高亮度等优良性质而备受人们的关注。随着锁模技术的出现,超短脉冲激光得以实现,并不断地发展,如今已成为科学研究、工业制造等诸多领域中强有力的工具之一。其中紫外激光因其独特的性质有着突出的应用价值。

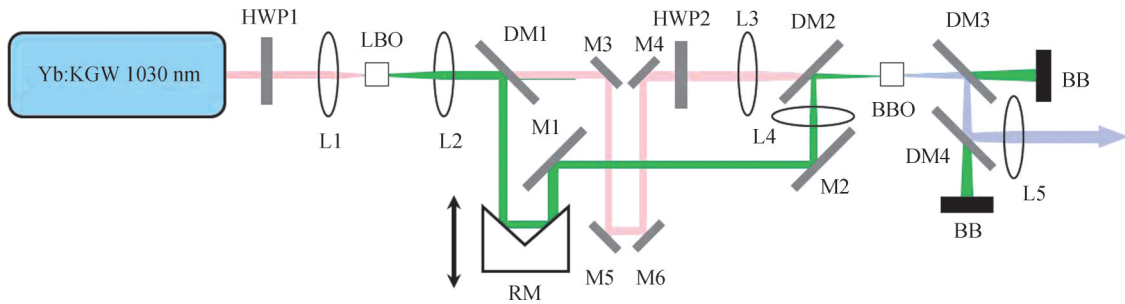
由于光束的衍射特性,光束可聚焦的最小直径随着波长的减小而线性减小,因此,波长较短的紫外激光能够精确加工超小细微的部件。其次,相较于可见光或红外光利用局部加热来熔化或气化材料,紫外激光单光子能量高,能够直接破坏材料的化学键,属于“冷”加工,具有很小的热影响区,因此紫外激光也是加工脆性材料、用于医疗手术的理想工具。同时,大多数材料都能有效地吸收紫外光,紫外激光可以对可见光和红外光不能加工的材料(如陶瓷、金属、聚合物等)进行加工。基于以上优势,紫外激光在激光加工^[1],特别是微加工方面^[2]得到广泛的应用。同时,与纳秒和皮秒激光相比,飞秒激光的脉冲宽度更窄,峰值功率更高,更适用于激光精密加工。超短紫外激光也可用于驱动基于宽禁带半导体的光电导天线产生宽带太赫兹辐射,宽禁带半导体如SiC或GaN具有较大的介电常数^[3],相比传统的窄带隙半导体光电导天线材料如:砷化镓(GaAs),可通过施加高偏置电场产生高平均功率的太赫兹脉冲,而其驱动源就需要单光子能量更高的超快紫外激光。另外,超快紫外激光在超快光谱学、显微技术以及泵浦光参量振荡器等方面也具有广泛的应用价值^[4-6]。与此同时,上述的诸多应用领域对紫外激光的高光束质量有着严格的要求。由于光束质量影响光斑的能量分布,在精密加工方面,高光束质量可以实现超高精度的加工,并且获得高的加工边缘质量,有效提高产品品质^[2]。

目前获得紫外激光输出的方法主要有准分子激光器、半导体激光器和非线性频率变换等。其中,非线性频率变换是产生超快紫外激光的主要手段。随着钛宝石飞秒激光技术和掺镱飞秒激光技术的发展,通过三倍频(Third Harmonic Generation, THG)可以得到的紫外和深紫外飞秒激光得到了大量研究。2001年,陈国夫等利用飞秒钛宝石锁模激光器实现了420 nm的倍频蓝光输出和280 nm的飞秒紫外光输出,其输出功率分别为170 mW和2 mW^[7]。随后,2004年程光华等利用钛宝石激光器在腔内实现了高效的倍频和四倍频输出,输出功率分别为610 mW和64 mW,对应的转换效率为16%(832 to 416 nm)和10.5%(416 to 208 nm)^[8]。2007年,魏志义课题组通过钛宝石放大器基频光与三倍频光的和频实现了195~210 nm的近真空紫外激光输出,在210 nm处实现了高达26.2%的转换效率,脉冲能量达到16 mJ^[9]。2015年,林文雄课题组对钛宝石激光器进行了三倍频实验,采用 $Ba_{1-x}B_{2-y-z}O_4Si_xAl_yGa_z$ (BBSAG)晶体对1 kHz、120 fs、2.5 W的800 nm基频光实现了倍频,并将基频光与倍频光在BBO晶体中进行合频,产生了256.7~276.7 nm可调谐的三次谐波,三倍频效率为8.5%^[10]。2016年,张宁华等利用 $K_3B_6O_{10}Cl$ (KBOC)晶体实现了基于钛宝石放大器的二次谐波产生,获得了输出功率220 mW的396 nm紫外激光,倍频的最高转换效率为39.3%^[11]。随后在2017年,同样利用KBOC晶体采用先倍频再和频的方案获得了263 nm的深紫外激光输出,倍频光与和频光最大输出功率分别为131 mW和5.9 mW,对应的转换效率分别为31%和4.5%^[12]。基于掺镱飞秒激光的三倍频可以获得高平均功率紫外飞秒激光。2015年,APURV C N等分别使用1.2 mm和5 mm长的三硼酸铋(BiB_3O_6 , BIBO)晶体进行倍频及和频,获得了平均功率1.06 W的355 nm和频光,紫外光转换效率约为22%^[13]。2017年, KIM G H等实现了基于Yb:KGW激光器的频率变换,倍频和三倍频的转换效率分别为50%和20%,平均功率是4 W和1.6 W,对应倍频光的光束质量(M^2)优于1.2,和频光光束质量未提及^[14]。2019年, SRINIVASA R A等利用LBO作为一级倍频晶体, BBO作为二级倍频晶体实现了四倍频,得到了功率高达616 mW,转换效率为12.8%的266 nm深紫外输出^[15]。2021年,张萌等利用掺镱光纤激光器进行了三倍频实验,输出功率为2.23 W,转换效率约为23%,其中,倍频光在 x 和 y 方向上的光束质量分别为1.48和1.44,和频光的光束质量未提及^[16]。

基于以上背景,本文系统研究了基于掺镱全固态飞秒激光器三倍频的高光束质量紫外飞秒激光产生。使用商用的Yb:KGW激光器作为基频光源,在入射功率约5 W的条件下,使用1.7 mm长的LBO晶体获得了超过3 W的最大倍频功率,在此基础上将剩余基频光和倍频光进行和频,采用一类相位匹配的BBO晶体,获得平均功率大于1 W的343 nm的紫外飞秒激光。三倍频效率超过20%的同时光束质量优于1.3。

1 实验设计

利用全固态装置产生紫外激光的方法一般有两种:一种是利用晶体的三阶非线性效应对近红外激光进行直接三倍频,该方法结构简单,但由于三阶非线性光学极化率 $|\chi^{(3)}|$ (典型情况约 $10^{-13}\sim 10^{-15}$)相比于二阶非线性极化率 $|\chi^{(2)}|$ (约 $10^{-7}\sim 10^{-9}$)通常很小,所以直接三倍频的转换效率较低^[17];另一种方法是先对近红外激光进行倍频,然后将剩余基频光和倍频光进行和频实现三倍频的紫外输出。本文采用第二种方法,实验装置如图1所示。泵浦源为商用Yb:KGW全固态飞秒激光器(Flint, Light Conversion),其中心波长为1 030 nm,光谱半高全宽(Full Width Half Maximum, FWHM)为15 nm,脉冲宽度为105 fs,重复频率为76 MHz,基频光在 x 和 y 方向上的 M^2 分别为1.14和1.12。HWP1为1 030 nm半波片,L1、L2分别为 $f=50$ mm的1 030 nm波段、1 030和515 nm波段的平凸透镜,DM1、DM2为对45°入射的剩余基频光高透、倍频绿光高反的双色镜,DM3、DM4为对45°入射的1 030和515 nm高透、343 nm高反的双色镜。L3为 $f=100$ mm的515和1 030 nm波段平凸透镜,M1、M2为对倍频绿光的高反镜,M3~M6为对剩余基频光的高反镜,RM为表面镀银的中空屋脊棱镜反射镜,对515 nm倍频光的反射率为90.6%。通过移动RM的位置改变倍频光和剩余基频光之间的相对延时。为了获得高效率的紫外光输出,需要保证基频光和倍频光在BBO晶体内时间和空间重合,通过M3~M6对剩余基频光的反射减小剩余基频光光路与倍频光光路之间的光程差,并通过平移RM1来控制基频光和倍频光的时间延迟保证时间重合;通过调节M2来控制基频光和倍频光来保证空间重合。



DM1-DM4: dichroic mirrors; M1-M6: plane mirrors; L1-L3: plano-concave lenses; RM: hollow roof prism mirror; BB: beam block; HWP: half wavelength plate

图1 实验装置图

Fig. 1 Experimental configuration

在非线性晶体的选择上,采用三硼酸锂(LiB_3O_5 , LBO)作为倍频晶体产生绿光,其具有损伤阈值高、色散和走离角较小等优点^[18],因此可以得到光束质量较好的倍频光。实验中使用的LBO晶体为I类相位匹配($1\ 030\ \text{nm}(\text{o})+1\ 030\ \text{nm}(\text{o})=515\ \text{nm}(\text{e})$),其切割角度为 $\theta=90^\circ$, $\varphi=13.5^\circ$,长度为1.7 mm。选用BBO晶体作为和频晶体,BBO晶体比LBO晶体有效非线性系数更大^[19],有利于获得高转换效率。相比于BIBO晶体,BBO晶体具有更宽的透光范围,较大的损伤阈值,同时,BBO晶体易于生长,成本低,但由于BIBO晶体的有效非线性系数较BBO晶体大,为了进一步提高转换效率,将在后续研究中使用BIBO进行实验。实验中分别使用一类相位匹配和二类相位匹配的BBO晶体,根据SNLO软件分别得到了I类相位匹配和II类相位匹配的BBO晶体的切割角度,同时,根据和频过程中基频光与倍频光的群速度失配,我们计算了对应100 fs脉冲宽度的晶体长度。一类相位匹配BBO晶体的切割角度为 $\theta=32.5^\circ$,长度为0.5 mm;二类相位匹配BBO晶体的切割角度为 $\theta=40.1^\circ$,长度为1 mm。

2 实验数据与分析

2.1 倍频实验

倍频绿光的光谱如图2(a)所示,中心波长为516 nm,半高宽度(Full Width Half Maximum, FWHM)为5.7 nm,对应的傅里叶变换极限脉冲宽度为49 fs。利用互相关的方法,对倍频绿光的脉冲进行了测量,假设其为双曲正割型脉冲,测得的脉冲宽度为157 fs。图2(b)为倍频光功率曲线,在5 W的基频光入射功率下,获得了倍频光最大功率为3 W,倍频效率约为60%,此时剩余的基频光功率为1.90 W。在该条件下测量了

倍频光和剩余基频光的功率稳定性,如图3(a)所示。4 h内倍频光的功率波动均方根(Root Mean Square, RMS)为0.19%,剩余基频光为0.32%,倍频光和剩余基频光的功率稳定性良好。利用光束质量分析仪(BSQ-SP920)测量了倍频光的光束质量,如图3(b)所示。倍频光在 x 和 y 方向上的 M^2 分别为1.12和1.22,表明倍频光具有良好的光束质量。

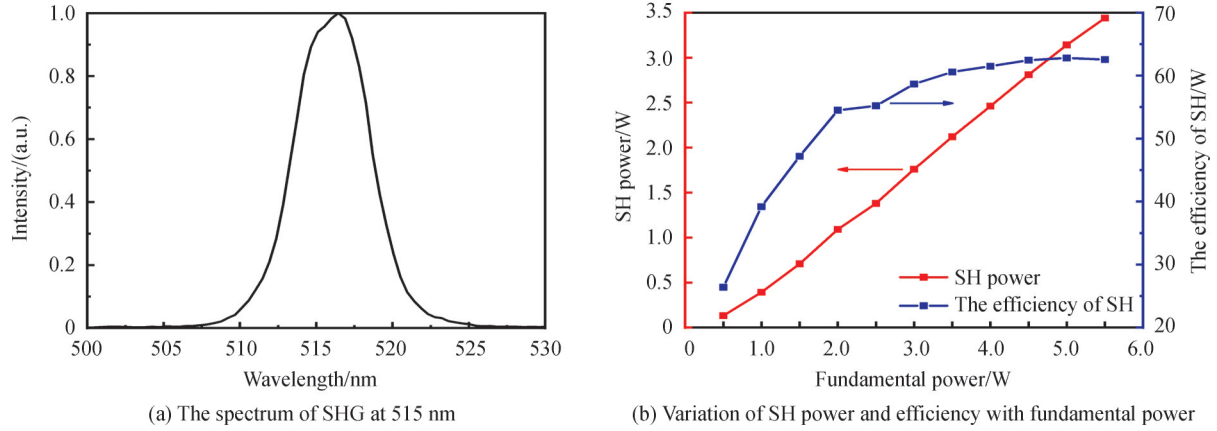


图2 倍频光光谱与倍频光功率及效率的变化曲线
Fig. 2 The spectrum of SHG and variation of SH power and efficiency

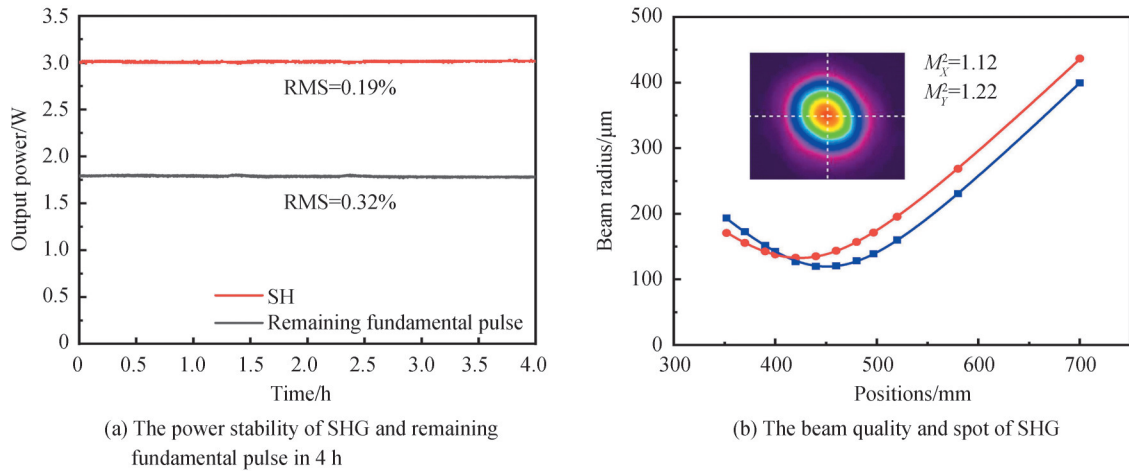


图3 倍频光和剩余基频光的功率稳定性与倍频光的光束质量
Fig. 3 The power stability of SHG and remaining fundamental pulse and the beam quality of SHG

2.2 三倍频实验

首先研究了基于II类相位匹配($1\ 030\ \text{nm}(\text{o})+515\ \text{nm}(\text{e})=343\ \text{nm}(\text{e})$)BBO晶体的三倍频产生。获得的和频光谱如图4(a)所示。和频光的中心频率为344 nm,FWHM为2.1 nm,对应的傅里叶变换极限脉冲宽度为59 fs。通过改变倍频晶体LBO的角度来改变倍频效率,研究了三倍频产生的效率同倍频光和剩余基频光功率配比之间的关系,如图4(b)所示。可以看出当剩余基频光功率为2.68 W,相应的倍频光功率为1.95 W,此时功率配比为1.37时,获得了最大三倍频转换效率为14%,对应的平均功率为0.71 W。

由于I类($1\ 030\ \text{nm}(\text{o})+515\ \text{nm}(\text{o})=343\ \text{nm}(\text{e})$)BBO的有效非线性系数明显大于II类相位匹配BBO晶体,为了获得更高的三倍频转换效率,进一步研究了基于I类相位匹配BBO晶体的三倍频产生。BBO晶体长度为0.5 mm,获得的和频光谱如图5(a)所示。和频光的中心频率为344 nm,FWHM为2.9 nm,对应的傅里叶变换极限脉冲宽度为43 fs。和频光功率和效率如图5(b)所示。在5 W入射基频光条件下获得最大和频光功率为1.01 W,此时对应的三倍频效率为20.2%,相比于更换晶体前的输出功率提升了约0.3 W,效率提升了约6%,此时入射到和频晶体中的基频光与倍频光的功率分别为2.36 W和2.26 W,对应的基频光与倍频光功率配比为1.04。

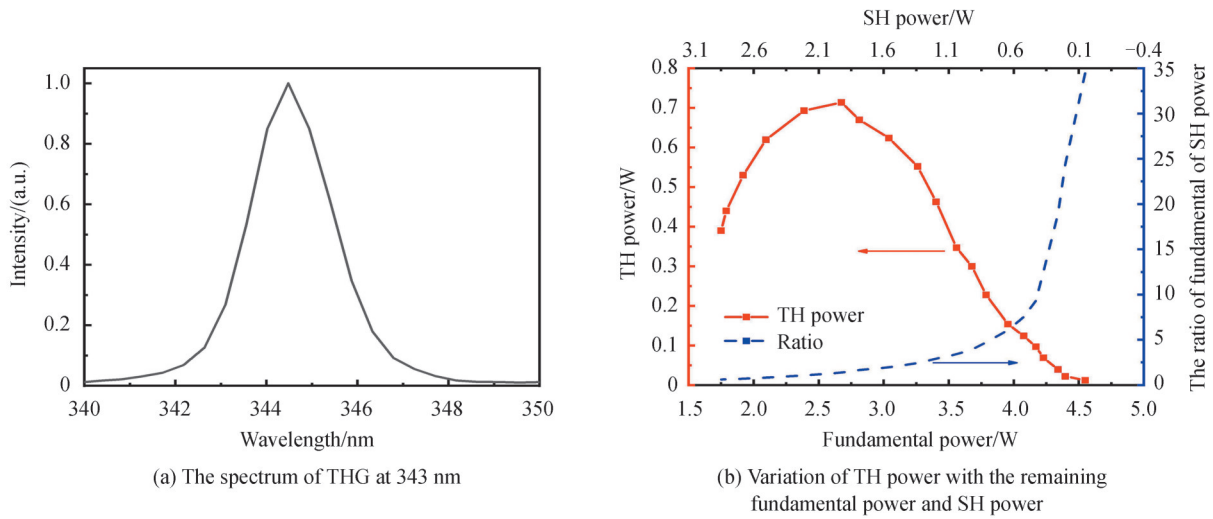


图4 和频光光谱与和频光功率的变化曲线
Fig. 4 The spectrum of THG and variation of TH power

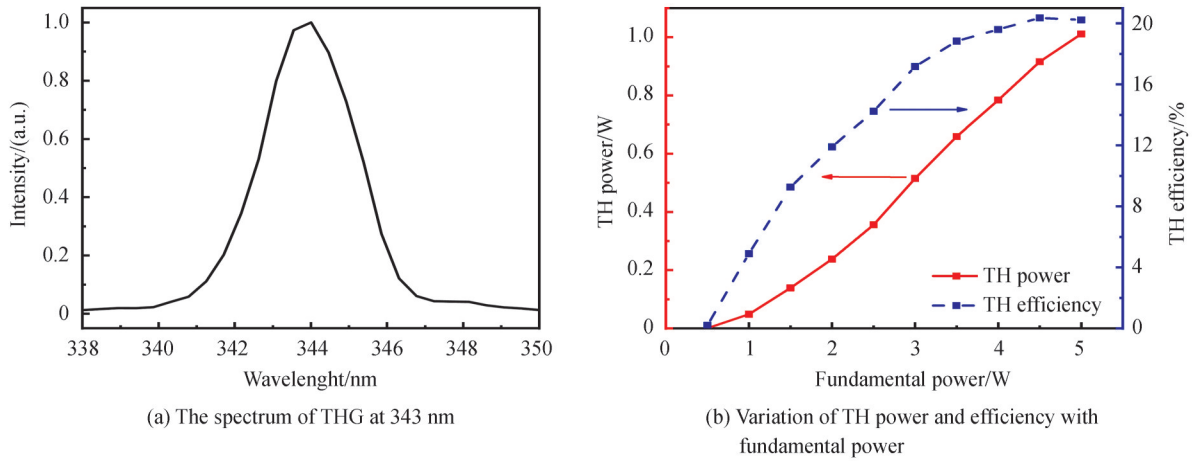


图5 和频光光谱与和频光功率及效率的变化曲线
Fig. 5 The spectrum of THG and variation of TH power and efficiency

利用 CCD 相机 (FLIR, Monochrome Camera) 测量了不同位置和频光的光斑大小并利用 Origin 2018 对其光束质量 (M^2) 进行了拟合, 如图 6 所示。和频光在 x 和 y 方向上的 M^2 分别为 1.25 和 1.28, 表明和频光具

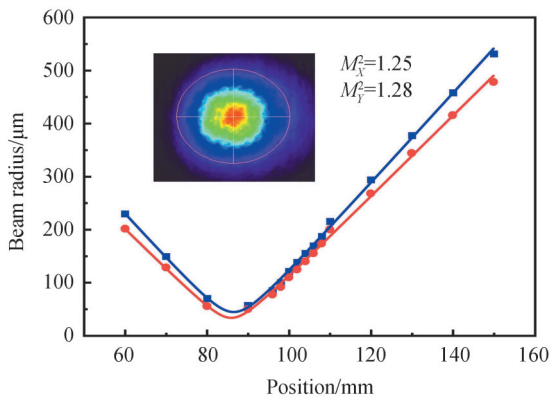


图6 343 nm 和频光光束质量及光斑
Fig. 6 The beam quality and spot of THG at 343 nm

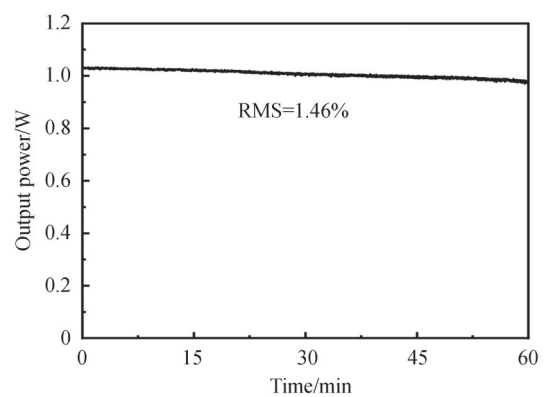


图7 1 h 内的和频光功率稳定性
Fig. 7 The power stability of THG in 1 h

有较好的光束质量。

实验测量了当三倍频光功率最大时的1 h功率稳定性如图7所示,对应RMS为1.46%。随着时间的增加,和频光功率出现小幅减低。当调整入射到BBO和频晶体的S1面上的不同位置时,和频平均功率会回升至1 W,因此推测是由于晶体光学镀膜损坏引起的和频功率下降。

3 结论

利用商用的Yb:KGW激光器进行了倍频和三倍频实验研究。利用I类相位匹配LBO作为倍频晶体,得到了中心波长位于516 nm处的倍频光,在基频光功率为5 W的条件下,获得的倍频光最大功率为3 W。在此基础上,利用倍频光与剩余基频光和频得到了中心波长位于344 nm的三倍频输出。利用1 mm长的II类相位匹配BBO晶体,得到的和频光最大平均功率为0.71 W,三倍频效率约为14%。随后,将和频晶体换为0.5 mm长的I类相位匹配BBO晶体,得到的和频光最大平均功率为1.01 W,三倍频效率为20.2%,其在 x 和 y 方向上的 M^2 分别为1.25和1.28。这种全固态飞秒激光三倍频装置转换效率高、稳定性好、光束质量高,在科学研究和激光加工等领域具有广泛使用价值。

参考文献

- [1] TANG Juan, LIAO Jianhong, MENG Hongyun, et al. Ultraviolet laser and its application in laser processing[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2007, 44(8):52-56.
唐娟, 廖健宏, 蒙红云, 等. 紫外激光器及其在激光加工中的应用[J]. 激光与光电子学进展, 2007, 44(8):52-56.
- [2] NIE S, GUAN Y. Review of UV laser and its applications in micromachining[J]. Opto-Electronic Engineering, 2017, 44(12):1169-1179+1251.
- [3] ROPAGNOL X, KOVÁCS Z, GILICZE B, et al. Intense sub-terahertz radiation from wide-bandgap semiconductor based large-aperture photoconductive antennas pumped by UV lasers [J]. New Journal of Physics, 2019, 21(11): 3042.
- [4] BAUER, MICHAEL. Femtosecond ultraviolet photoelectron spectroscopy of ultra-fast surface processes [J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2005, 38(16):R253-R267.
- [5] KLAR T A, HELL S W, et al. Subdiffraction resolution in far-field fluorescence microscopy.[J]. Optics Letters, 1999, 24(14):954-956.
- [6] FAN Y X, ECKARDT R C, BYER R L, et al. Visible BaB₂O₄ optical parametric oscillator pumped at 355 nm by a single-axial-mode pulsed source[J]. Applied Physics Letters, 1988, 53(21):2014-2016.
- [7] CHEN Guofu, WANG Yishan, YU Lianjun, et al. Experimental study of the generation of femtosecond ultraviolet laser pulse from the harmonics of Ti:Sapphire[J]. Acta Photonica Sinica, 2001, 30(1):11-14.
陈国夫, 王屹山, 于连君, 等. 飞秒紫外激光脉冲振荡的实验研究[J]. 光子学报, 2001, 30(1):11-14.
- [8] CHENG Guanghua, WANG Yishan, YU Lianjun, et al. High efficient second harmonic at 416 nm and fourth harmonic generation at 208 nm in compacted all-solid-state ti:sapphire laser[J]. Chinese Journal of Lasers, 2004, 31(7):769-772.
程光华, 王屹山, 于连君, 等. 高效全固化钛宝石腔内倍频蓝光和四倍频紫外激光器的研究[J]. 中国激光, 2004, 31(7):769-772.
- [9] ZHU Jiangfeng, LING Weijun, WANG Zhaohua, et al. High-energy picosecond near-vacuum ultraviolet pulses generated by sum-frequency mixing of an amplified Ti:sapphire laser[J]. Applied Optics, 2007, 46(25):6228-6231.
- [10] MENG X, LIU H, HUANG J, et al. Generation of tunable ultrafast ultraviolet third harmonic by collinear compensation of group-velocity mismatch [J]. Optics Communications, 2015, 353: 96-100.
- [11] ZHANG Ninghua, TENG Hao, HUANG Hangdong, et al. Generation of femtosecond laser pulses at 396 nm in K₃B₆O₁₀Cl crystal[J]. Chinese Physics B, 2016, 25(12):262-265.
- [12] ZHANG Ninghua, WEI Zhiyi, FANG Shaobo, et al. Generation of femtosecond laser pulses at 263 nm by K₃B₆O₁₀Cl crystal[J]. Chinese Physics B, 2017, 26(6):187-191.
- [13] APURV C N, AADHI A, JABIR M V, et al. High-power, high-repetition-rate, Yb-fiber laser based femtosecond source at 355nm[J]. Optics Letters, 2015, 40(18):4269-4272.
- [14] KIM G H, YANG J, LEE B, et al. Efficient generation of the second and third harmonics of high-power femtosecond Yb:KGW-laser radiation in nonlinear-optical BBO crystals[J]. Journal of Optical Technology of Opticheskii Zhurnal, 2016, 83(8):463.
- [15] RAO A S, CHAITANYA N Y, SAMANTA G K. High-power, high repetition-rate, ultrafast fiber laser based source of DUV radiation at 266 nm[J]. OSA Continuum, 2019, 2(1):99-106.
- [16] ZHANG Meng, CHU Yuxi, ZHAO Jun, et al. Efficient generation of third harmonics in Yb-doped femtosecond fiber laser via spatial and temporal walk-off compensation[J]. Chinese Optics Letters, 2021, 19(3):73-77.
- [17] SHEN Y R. THE PRINCIPLES OF NONLINEAR OPTICS[M]. GU Shijie, transl. Beijing: Science Press, 1987.

沈元壤. 非线性光学原理[M]. 顾世杰, 译. 北京:科学出版社, 1987.

[18] NIKOGOSYAN D N. Lithium triborate (LBO)[J]. Applied Physics A, 1994, 58(3):181-190.

[19] NIKOGOSYAN D N. Beta barium borate (BBO)[J]. Applied Physics A, 1991, 52(6):359-368.