

# 高功率高重复频率多波长飞秒激光系统的研究\*

刘华刚 胡明列<sup>†</sup> 刘博文 宋有建 柴 路 王清月

(天津大学精密仪器与光电子工程学院, 光电信息技术科学教育部重点实验室, 天津 300072)

(2009 年 7 月 17 日收到; 2009 年 10 月 27 日收到修改稿)

以大模场面积光子晶体光纤飞秒激光系统为基频光源, 利用非线性频率上转换的方法, 获得了高功率高重复频率多波长的飞秒激光脉冲. 理论分析并实验验证了聚焦透镜的焦距对倍频光横向模场分布的影响, 透镜焦距越长, 模场质量越好. 在基频光平均功率为 21.8 W, 脉冲宽度为 110 fs, 重复频率为 50 MHz 的条件下, 经过二倍频、三倍频和四倍频获得波长分别为 520, 347 和 261 nm 的飞秒激光, 其平均功率分别达 10.5, 4.7 和 2.14 W. 二倍频和三倍频的转换效率分别为 48.2% 和 21.6%, 二倍频到四倍频的转换效率为 20.4%. 采用互相关法测量得到 261 nm 紫外激光的脉冲宽度为 408 fs.

**关键词:** 超快光学, 紫外飞秒激光, 频率上转换, 光子晶体光纤激光器

**PACC:** 4265K, 4255N

## 1. 引 言

从可见光到紫外光谱区范围内较短波长的超短脉冲激光, 除超短脉冲本身所具有的脉冲宽度窄、峰值功率高的特点外, 还具有较高的单光子能量和空间分辨率, 因此短波长的超短脉冲激光在超快光谱技术、物理和化学等学科的超快现象和超快过程的探测、飞秒激光微纳加工等领域都有着很大的应用潜力和重要的研究价值<sup>[1-3]</sup>. 但是目前直接获得的超短脉冲激光多在较长波长范围内, 而能直接获得紫外激光的准分子激光器结构复杂、可靠性差、操作十分不便, 且光束质量以及脉冲宽度无法满足要求. 用非线性频率变换技术对可见光或红外光进行倍频或和频转换, 成为当前获得高质量紫外激光的最简捷而有效的方法<sup>[4-8]</sup>, 其中采用锁模钛宝石激光器或放大器作为基频光源可以获得飞秒量级的紫外激光脉冲<sup>[1, 9-11]</sup>.

具有高功率高重复频率的新一代光子晶体光纤飞秒激光系统的研制为紫外超短脉冲激光的产生开辟了新的途径<sup>[12, 13]</sup>. 光子晶体光纤飞秒激光系

统采用掺 Yb<sup>3+</sup> 双包层大模场面积偏振光子晶体光纤作为增益介质, 由半导体激光器直接抽运, 使得该系统效率高、结构紧凑、成本低廉. 光子晶体光纤可以提供高出普通光纤两个数量级的模场面积, 有效地降低了非线性效应, 从而使光纤放大器能支持更高的功率. 而且光纤增益介质将激光限制在光纤波导中传输, 光束质量好, 具有很好的环境稳定性和紧凑的结构. 基于此系统的非线性频率变换技术将大大扩展它的波长范围和应用领域. 为获得尽可能好的光束质量和较高的转换效率, 从理论上分析了采用  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (BBO) 晶体时获得的二次谐波 (SH) 椭圆型横向模场的形成原因及其受透镜焦距的影响, 并实验验证了采用不同焦距的透镜聚焦情况下 SH 横向模场分布的变化. 在重复频率为 50 MHz, 平均功率为 21.8 W 的基频光抽运下进行了倍频及和频转换, 获得了中心波长为 520, 347 和 261 nm 的 SH、三次谐波 (TH) 和四次谐波 (FH) 激光脉冲, 其平均功率分别达到 10.5, 4.7 和 2.14 W. 二倍频和三倍频的转换效率分别为 48.2% 和 21.6%, 二倍频到四倍频的转换效率为 20.4%. 据我们所知, 在高重复频率运转下, 2.14 W 是当前

\* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2010CB327604, 2006CB806002)、国家高技术研究发展计划 (批准号: 2007AA03Z447)、国家自然科学基金 (批准号: 60978022, 60838004)、高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 20070056083, 20070056073)、教育部科学技术研究计划重点项目 (批准号: 108032)、全国优秀博士学位论文作者专项基金 (批准号: 2007B34) 和教育部新世纪优秀人才支持计划 (批准号: NCET-07-0597) 资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail: huminglie@tju.edu.cn

261 nm 波段飞秒激光的最高输出功率.

## 2. 实验装置

实验中光子晶体光纤激光振荡级采用孤子锁模方式,输出激光中心波长为 1040 nm,重复频率为 50 MHz,放大后频谱带宽约为 40 nm,用光栅对压缩后的脉冲宽度为 110 fs. 图 1 是基频光( $\omega$ )的光谱和压缩后的脉冲自相关曲线. 具体实验装置如图 2 所示, $L_1$  是聚焦透镜,将基频光聚焦到非线性晶体上进行倍频转换. 二倍频采用 BBO 和  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  (LBO) 两种晶体. 其中  $\text{BBO}_1$  长度为 2 mm,采用 I 类相位匹配方式( $\theta = 23.2^\circ, \varphi = 0^\circ$ ),LBO 晶体长度为 3.5 mm, I 类相位匹配( $\theta = 90^\circ, \varphi = 12.9^\circ$ ). 倍频后的光束经  $L_2$  准直后,由谐波分束片  $M_1$  分束,基频光和  $\text{SH}(2\omega)$  分别被透射和反射. 图 2 中虚线框内为进行三倍频的和频装置( $\omega + 2\omega \rightarrow 3\omega$ ),其中  $M_3$  对 SH 高反, $M_2$  与  $M_1$  相同,可以使 SH 和倍频后剩余的基频光合束,然后经  $L_3$  聚焦到  $\text{BBO}_2$  上进行和频, $\text{BBO}_2$  晶体长度为 2.5 mm (I 类相位匹配, $\theta = 32.1^\circ, \varphi = 0^\circ$ ). 在不加入虚线中的和频装置时,经  $M_1$  反射后的 SH 可由  $L_4$  直接聚焦到  $\text{BBO}_3$  晶体上进行四倍频

转换,四倍频仍采用 I 类相位匹配方式,晶体长度为 0.8 mm( $\theta = 49.2^\circ, \varphi = 0^\circ$ ). 最后采用互相关方法来测量紫外激光的脉冲宽度,从  $M_1$  透射的剩余基频光作为参考光,待测的 FH 紫外激光与参考光进行差频( $4\omega - \omega \rightarrow 3\omega$ ),调节脉冲间延迟从而可获得互相关曲线,其中差频所采用的非线性介质是长度为 0.1 mm 的  $\text{BBO}_4$  晶体 (I 类相位匹配, $\theta = 41.6^\circ, \varphi = 0^\circ$ ).

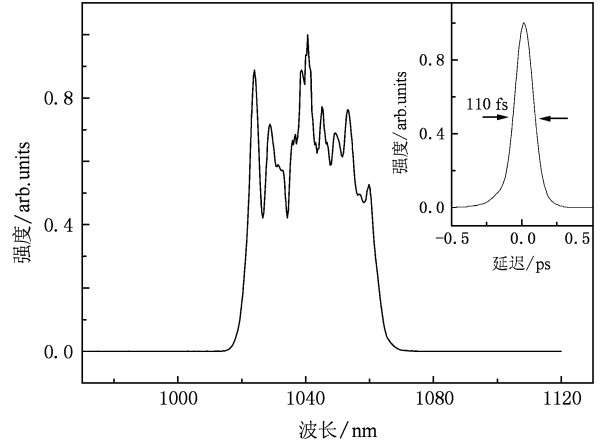


图 1 基频光谱 内插图 为压缩后脉冲自相关曲线

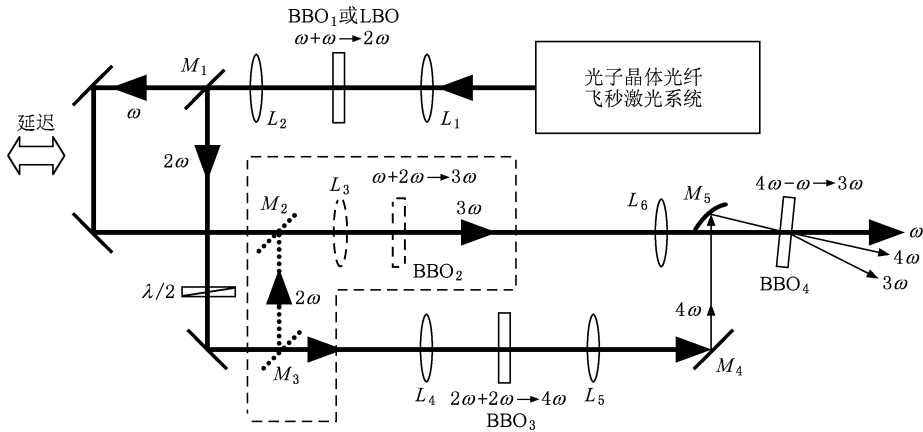


图 2 高功率高重复频率多波长飞秒激光产生和紫外脉冲宽度测量装置示意图 虚线框内为进行三倍频的和频装置

## 3. BBO 晶体倍频的横向模场分布

BBO 是负单轴晶体,其性质及所采用的相位匹配方式决定了 SH 的横向模场分布. 设基频光与 SH 之间的相位失配为  $\Delta k$ ,则  $\Delta k$  可表示为

$$\Delta k = 2k_\omega - k_{2\omega}, \quad (1)$$

其中  $k_\omega$  和  $k_{2\omega}$  分别为基频光和 SH 的波数. 在小信号

近似下,SH 强度可表示为<sup>[14]</sup>

$$|I_{2\omega}| = \frac{8\pi^2 l^2 d_{\text{eff}}^2}{n_\omega^2 n_{2\omega} \lambda_\omega^2 c \epsilon_0} |I_\omega|^2 \left[ \text{sinc}\left(\frac{\Delta k l}{2}\right) \right]^2, \quad (2)$$

其中  $l$  是晶体长度, $d_{\text{eff}}$  是有效非线性系数, $I_{2\omega}$  和  $I_\omega$  分别为 SH 和基频光光强. 根据公式(2),在基频光与 SH 之间满足完全相位匹配条件时( $\Delta k = 0$ ),SH 的强度最大,转换效率最高,而当相位失配增大时( $\Delta k \neq 0$ ),倍频效率会迅速降低. 倍频过程中,因聚

焦使得基频光具有较大的发散角,而倍频转换存在一个所能允许的最大偏离角,即相位匹配接收角.在 BBO 晶体 I 类相位匹配( $o+o \rightarrow e$ )条件下,相位匹配在主平面上的接收角与垂直于主平面上的接收角是不同的.根据公式(1),相位失配  $\Delta k$  与基频光和 SH 的波数有关,其中 SH 为 e 光,其波数  $k_{2\omega}$  可表示为  $\theta$  角的函数,

$$k_{2\omega} = \frac{2\pi n_{2\omega}}{\lambda_{2\omega}} = \frac{2\pi}{\lambda_{2\omega}} \frac{n_o n_e}{(n_o^2 \sin^2 \theta + n_e^2 \cos^2 \theta)^{1/2}}. \quad (3)$$

很显然,  $\Delta k$  也是  $\theta$  的函数.图 3 为 BBO 晶体 I 类相位匹配角与矢量关系,在主平面上( $xoz$ 面),中心光束满足相位匹配条件  $\Delta k = 0$ ,而偏离中心的光束改变了  $\theta$  角的大小,  $\Delta k$  不再为零,造成倍频效率的下降.图 4 是采用不同焦距的情况下理论模拟所得 SH 的强度随  $\theta$  和  $\varphi$  的分布关系.倍频光强以及  $\Delta k$  对  $\theta$  的变化比较敏感,即在主平面内相位匹配接收角较小,此时的相位匹配接收角只有 0.55 mrad/cm.比较而言,在垂直于主平面方向,方位角的变化对  $\Delta k$  的影响很小,因此相位匹配接收角较大.表现在 SH 的横向模场分布上,相位匹配接收角小的方向上,

模场直径小,而接收角大的方向上,模场直径大,因此就会形成椭圆型的横向模场分布,且长轴的方向与基频光偏振方向平行( $o$ 光偏振方向).另外,比较不同的焦距  $f$  可以发现,  $f$  越大,基频光的发散角较小,获得 SH 的横向模场越接近于基模,光束质量就越好.图 5 为采用不同焦距情况下实验测量得到的 SH 横向模场分布,无论从光斑形状还是其随焦距大小的变化趋势来看,实验结果均与理论分析相符.

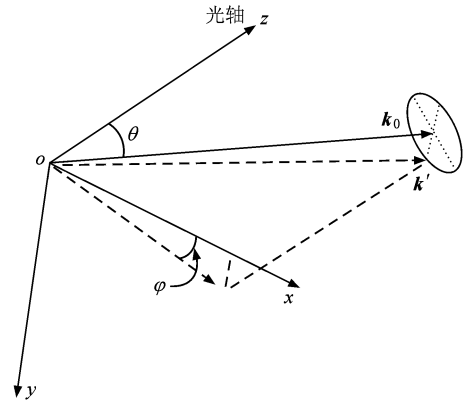


图 3 BBO 晶体 I 类相位匹配角与矢量关系  $\theta$  为相位匹配角,  $\varphi$  为方位角,  $k_0$  为基频光中心光束的波矢,  $k'$  为偏离中心方向的波矢

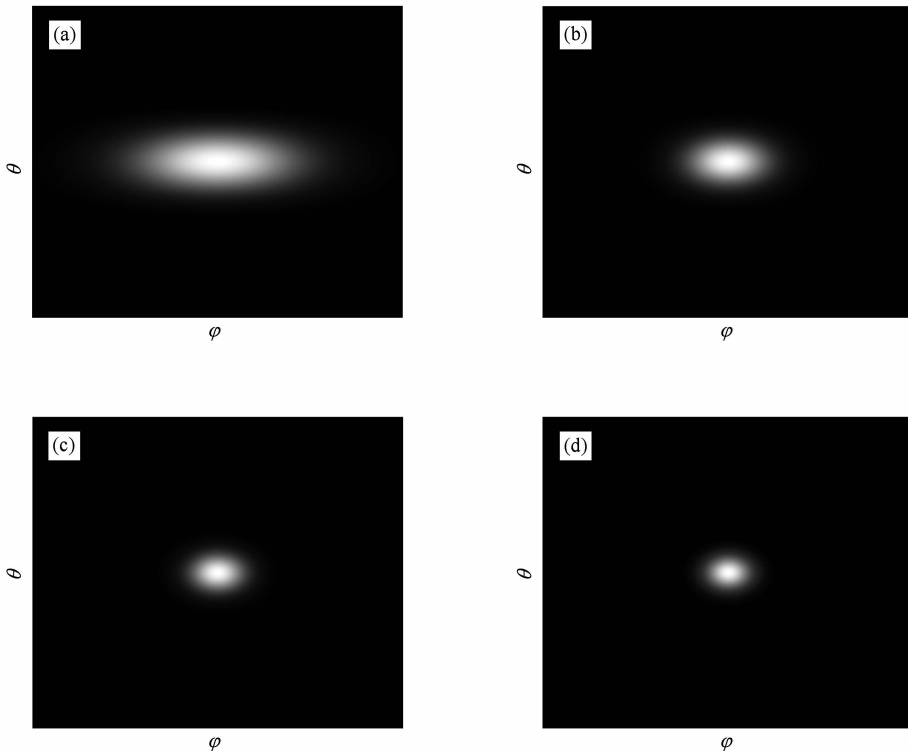


图 4 理论模拟得到不同焦距聚焦情况下 SH 强度随  $\theta$  和  $\varphi$  的分布关系 (a)  $f=50$  mm, (b)  $f=100$  mm, (c)  $f=150$  mm, (d)  $f=200$  mm

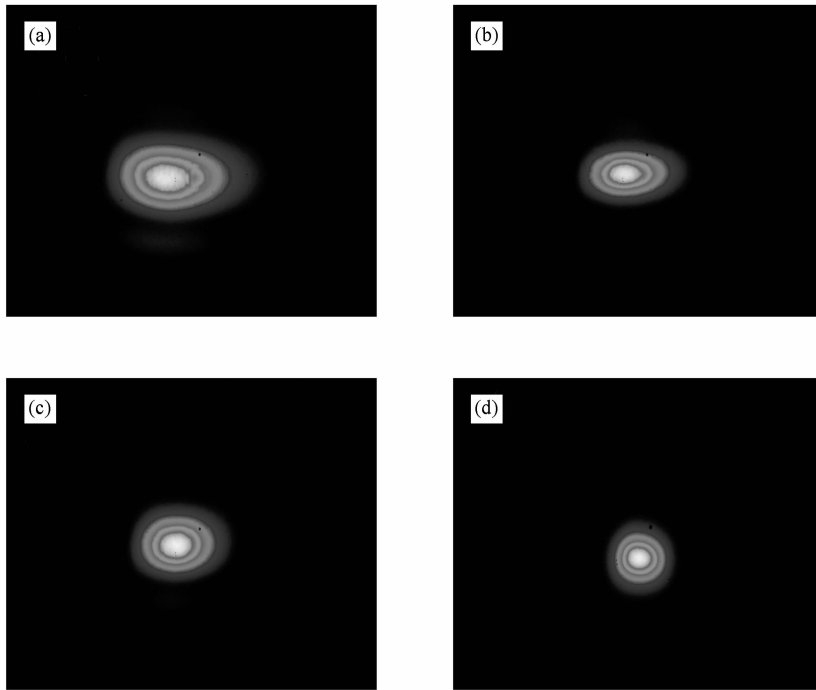


图5 采用不同焦距的透镜情况下实验测得 SH 横向模场分布 (a) $f=50$  mm, (b) $f=100$  mm, (c) $f=150$  mm, (d) $f=200$  mm

#### 4. 实验结果与分析

根据上述分析可知:实验中聚焦透镜如果选取较短的焦距,则会降低光束质量,同时造成光束的发散角太大而使基频光不能被充分利用.如果选用较长的焦距,则会降低基频光聚焦到晶体上的光强,降低倍频效率.因此,为了在获得高转换效率的同时兼顾 SH 的光束质量,应选择适中的焦距, $L_1$ ,  $L_3$  和  $L_4$  的焦距分别为 100, 100 和 110 mm.

在进行二倍频时,对采用 BBO 和 LBO 晶体作为非线性介质所得的结果进行了比较(图 6).尽管采用的 BBO 晶体长度(2 mm)小于 LBO 晶体的长度(3.5 mm),但由于 BBO 晶体具有更大的有效非线性系数,因而可以获得更大的转换效率.在基频光平均功率为 21.8 W 时,用 BBO 和 LBO 晶体时获得 SH 的平均功率分别为 10.5 和 9.1 W,对应的转换效率分别为 48.2% 和 41.7%.图 6(b)为采用 BBO 晶体时测得的 SH 光谱,光谱带宽约为 10 nm.由于 LBO 晶体具有更大的相位匹配接收角,在同样焦距条件下,它所获得 SH 的横向模场明显好于 BBO 晶体,图 6(c)和图 5(b)分别给出了采用 LBO 晶体和

BBO 晶体获得的 SH 的横向模场.因此,在后续进行的三倍频产生实验中,二倍频时采用的是 LBO 晶体,然后利用其产生较好的 SH 横向模场,能够与基频光更好地满足空间上的匹配,有利于提高和频的转换效率.图 7(a)为产生的 TH 光功率随基频光功率的变化曲线,最高平均功率为 4.7 W,转换效率达 21.6%.在不插入反射镜  $M_3$  时,采用 BBO<sub>1</sub> 晶体进行二倍频以获得更高的转换效率,然后经  $M_1$  反射后的 SH 可由  $L_4$  聚焦到 BBO<sub>3</sub> 上,再次直接倍频获得 FH 紫外激光.实验测量的 FH 功率和光谱如图 8 所示,获得最大 FH 脉冲平均功率为 2.14 W,单脉冲能量为 42.8 nJ,二倍频到四倍频转换效率达 20.4%.紫外激光脉冲中心波长为 261 nm,带宽为 1.2 nm,受晶体增益带宽的限制, FH 的光谱带宽较窄,基频光谱没有被完全利用.由图 6(a)、图 7(a)和图 8(a)可知,频率变换产生的 SH, TH 和 FH 的功率均随基频光功率呈增长趋势,在本实验所采用的抽运功率条件下尚未达到饱和,因此我们相信提高基频光功率并优化系统参数,还可以获得更高的谐波功率.

因传统自相关方法无法测量紫外激光的脉冲宽度,实验采用了互相关的方法进行测量,测量装

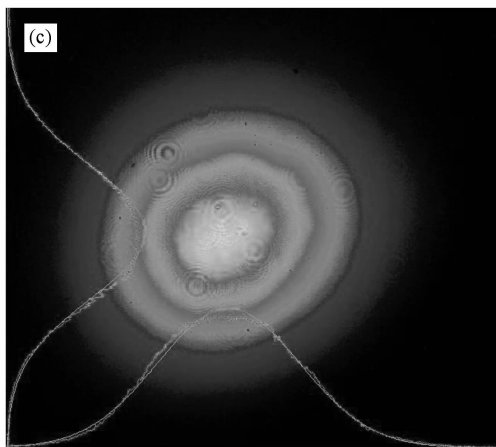
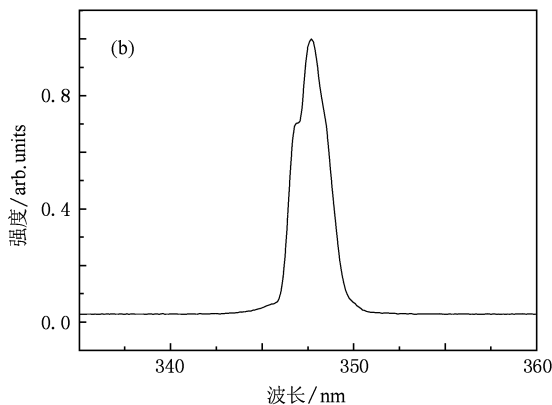
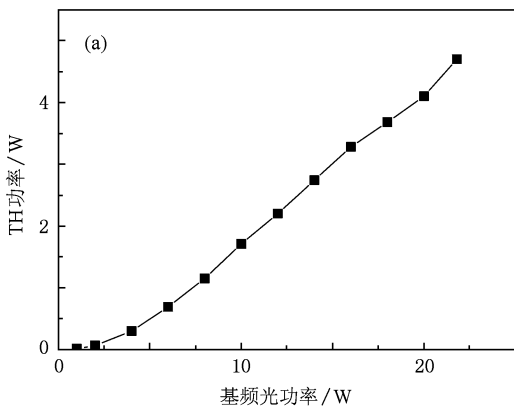
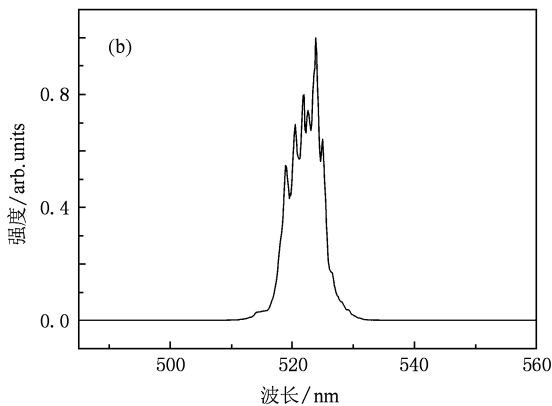
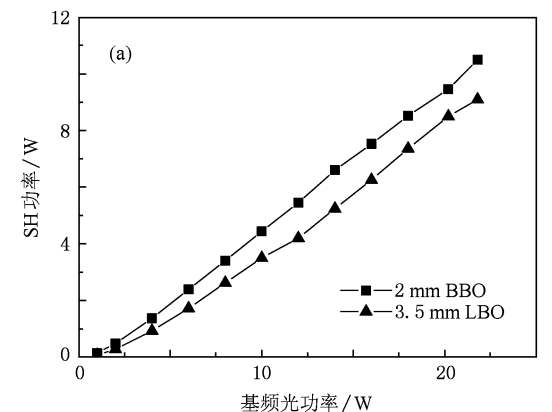


图6 实验获得SH的功率、光谱以及横向模场分布 (a) 分别采用BBO和LBO晶体作为非线性介质时获得SH的功率随基频光功率的变化, (b) 采用2 mm BBO晶体时SH的光谱, (c) 采用LBO晶体时获得SH的横向模场分布

图7 实验获得TH的功率曲线及光谱 (a) TH(347 nm)功率随基频光功率的变化曲线, (b) TH的光谱

置如图2所示. 待测紫外脉冲激光( $4\omega$ )与二倍频后剩余的基频光进行差频, 得到347 nm的互相关信号. 调节脉冲间相对延迟, 可测得强度互相关曲线, 结果如图9所示, 其中实线为双曲正割拟合曲线. 互相关曲线半高全宽为449 fs, 因剩余的基频光被展宽至134 fs, 由互相关曲线宽度的表达式<sup>[15]</sup>计算可

得FH紫外激光的脉冲宽度为408 fs, 这一宽度大于110 fs基频光脉冲宽度. 有以下四个因素使脉冲宽度展宽: 一是实验中所用的透镜以及BBO晶体本身所带来的色散. 二是倍频中群速度失配造成的展宽. 定义走离长度为  $L_w = T_0 / |v_g^{-1}(\omega_1) - v_g^{-1}(\omega_2)|$ , 它表示脉冲之间走离  $T_0$  的时间时光在介质中所传播的距离. 取  $T_0$  为基频光脉冲宽度, 即  $T_0$  为110 fs时, 二倍频和四倍频过程所对应的走离长度分别为1.2和0.18 mm, 而实验实际所采用的晶体长度分别为2和0.8 mm, 均大于理论长度. 采用较长的晶体主要是为了提高倍频的转换效率, 以获得更大的功率, 其负面影响就是展宽了脉冲. 三是测量本身带来的误差. 由于参考光(1040 nm)和待测光(261 nm)之间群速度差别较大, 0.1 mm的BBO晶体可造成两束光之间88 fs的群延迟, 对测量精度的影响不可忽略. 四是由于二倍频和四倍频过程中增益带宽的限制, 使得相应的光谱宽度变窄. 以上四种因素是造成FH的脉冲宽度加宽的主

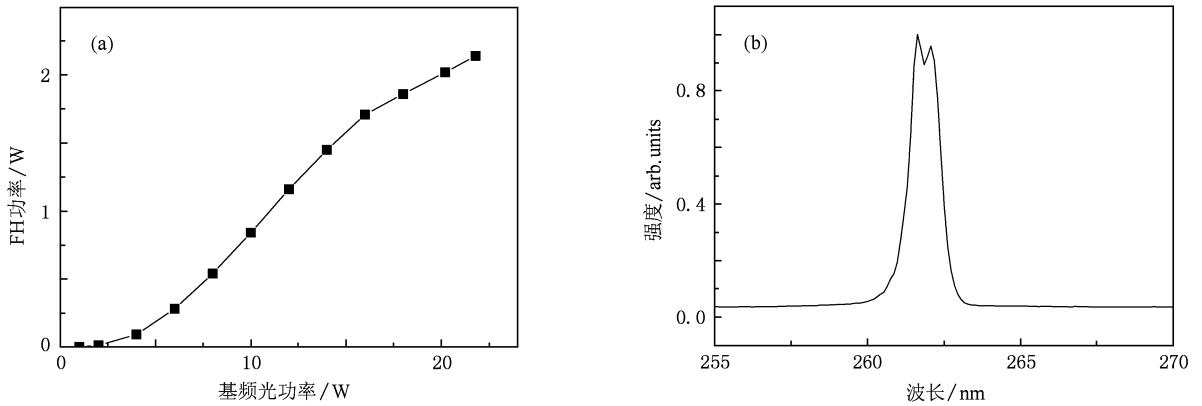


图 8 实验获得 FH 的功率曲线及光谱 (a) FH(261 nm) 功率随基频光功率的变化曲线, (b) FH 的光谱

要原因,优化系统设计,相信可以获得更窄宽度的紫外飞秒脉冲.

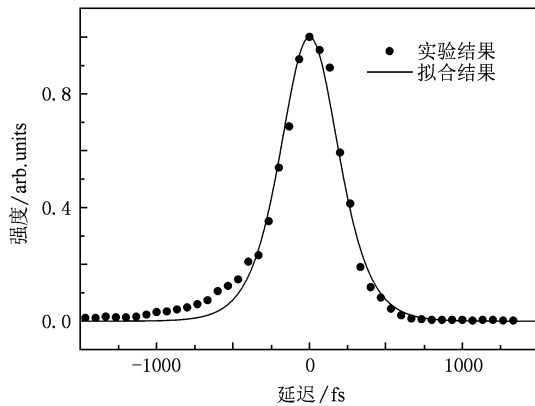


图 9 实验测量 FH 紫外激光脉冲宽度所获得的互相关曲线

## 5. 结 论

分析了倍频过程中聚焦透镜的焦距与 SH 的横向模场分布的关系,透镜焦距越长,横向模场越接近于圆形的基模,光束质量越好.理论分析和计算结果表明,BBO 晶体在主平面和垂直于主平面上的相位匹配接收角不同是造成椭圆型模场分布的主要原因.采用大模场面积光子晶体光纤飞秒激光系统作为基频光源,进行了二倍频、三倍频和四倍频实验,获得了 50 MHz、高功率、多波长的飞秒激光,波长为 520,347 和 261 nm 的激光平均功率分别为 10.5,4.7 和 2.14 W,其中 261 nm 的紫外激光脉冲宽度为 408 fs.这种紧凑型、高重复频率的多波长超短脉冲激光光源在激光微纳加工、生物光子学等多个领域具有巨大的应用潜力.

- [1] Baum P, Lochbrunner S, Riedle E 2004 *Opt. Lett.* **29** 1686
- [2] Zhu J F, Ling W J, Wang Z H, Wang P, Sun J H, Wei Z Y, Zhang D C, Ma X W, Zhan W L 2007 *Appl. Opt.* **46** 6228
- [3] Zhou Y, Wang G L, Li C M, Peng Q J, Cui D F, Xu Z Y, Wang X Y, Zhu Y, Chen C T, Liu G D, Dong X L, Zhou X J 2008 *Chin. Phys. Lett.* **25** 963
- [4] He J L, Lu X Q, Jia Y L, Man B Y 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2106 (in Chinese) [何京良、卢兴强、贾玉磊、满宝元 2000 物理学报 **49** 2106]
- [5] Wang G L, Geng A C, Bo Y, Li H Q, Sun Z P, Bi Y, Cui D F, Xu Z Y, Yuan X, Wang X Q, Shen G Q, Shen D Z 2006 *Opt. Commun.* **259** 820
- [6] Zhang H, Wang G, Guo L, Geng A, Bo Y, Cui D, Xu Z, Li R, Zhu Y, Wang X, Chen C 2008 *Appl. Phys. B* **93** 323
- [7] Chen C T, Kanai T, Wang X Y, Zhu Y, Watanabe S 2008 *Opt. Lett.* **33** 282
- [8] Zhao S H, Chen G F, Zhao W, Wang Y S, Yu L J 2001 *Chin. Phys. Lett.* **18** 537
- [9] Ringling J, Kittelmann O, Noack F 1993 *Opt. Lett.* **18** 2035
- [10] Rotermund F, Petrow V 1998 *Opt. Lett.* **23** 1040
- [11] Liu Y Q, Zhang J, Liang W X, Wang Z H 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 1593 (in Chinese) [刘运全、张杰、梁文锡、王兆华 2005 物理学报 **54** 1593]
- [12] Song Y J, Hu M L, Liu B W, Chai L, Wang Q Y 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 6425 (in Chinese) [宋有建、胡明列、刘博文、柴路、王清月 2008 物理学报 **57** 6425]
- [13] Liu B W, Hu M L, Song Y J, Chai L, Wang Q Y 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 6921 (in Chinese) [刘博文、胡明列、宋有建、柴路、王清月 2008 物理学报 **57** 6921]

- [14] Lan X J 2005 *Laser Technology* (2nd ed) (Beijing: Science Press) p287 (in Chinese) [蓝信钜 2005 激光技术(第二版) (北京:科学出版社) 第 287 页]
- [15] Fürbach A, Le T, Spielmann C, Krausz F 2000 *Appl. Phys. B* **70** S37

## Study on the high-power, high-repetition-rate and multi-wavelength femtosecond laser system \*

Liu Hua-Gang Hu Ming-Lie<sup>†</sup> Liu Bo-Wen Song You-Jian Chai Lu Wang Qing-Yue  
(Key Laboratory of Opto-electronic Information Science and Technology of Ministry of Education, College of Precision Instruments and Opto-electronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China)

(Received 17 July 2009; revised manuscript received 27 October 2009)

### Abstract

High-power and high-repetition-rate multi-wavelength femtosecond pulses are obtained by the nonlinear frequency up-conversion of large mode area photonic crystal fiber femtosecond system. Effects of focal length on the transverse mode of second harmonic are theoretically analyzed and experimentally demonstrated, showing that the longer the focal length, the better the mode quality. Under the condition of fundamental average power of 21.8 W, pulse duration of 110 fs and repetition rate of 50 MHz, generation of the second, third and fourth harmonics are achieved at the wavelengths of 520, 347, and 261 nm, with the maximum average power of 10.5, 4.7, and 2.14 W, respectively. The conversion efficiencies of frequency doubling and frequency tripling are 48.2% and 21.6%, and the conversion efficiency of frequency quadrupling from the second harmonic is 20.4%. Pulse duration of the fourth harmonic pulse is 408 fs, as measured by the cross-correlation technique.

**Keywords:** ultra-fast optics, ultraviolet femtosecond laser, frequency up-conversion, photonic crystal fiber laser

**PACC:** 4265K, 4255N

---

\* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant Nos. 2010CB327604, 2006CB806002), the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2007AA03Z447), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60978022, 60838004), the Doctoral Program Foundation of Institution of Higher Education, China (Grant Nos. 20070056083, 20070056073), the Key Program of Science and Technology Research of Ministry of Education, China (Grant No. 108032), the Foundation for the Author of National Excellent Doctoral Dissertation of China (Grant No. 2007B34) and the Program for the New Century Excellent Talents in University of Ministry of Education, China (Grant No. NCET-07-0597).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: huminglie@tju.edu.cn