

$\text{Ba}_{1-x}\text{B}_{2-y-z}\text{O}_4\text{Si}_x\text{Al}_y\text{Ga}_z$ 晶体和频可调谐深紫外飞秒激光器

孟祥昊 刘华刚 黄见洪 戴殊韬 邓晶 阮开明 陈金明 林文雄

Tunable deep ultraviolet femtosecond sum frequency laser based on $\text{Ba}_{1-x}\text{B}_{2-y-z}\text{O}_4\text{Si}_x\text{Al}_y\text{Ga}_z$ crystal
Meng Xiang-Hao Liu Hua-Gang Huang Jian-Hong Dai Shu-Tao Deng Jing Ruan Kai-Ming Chen Jin-Ming Lin Wen-Xiong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 164205 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.164205

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.164205>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I16>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

高稳定性高质量脉冲压缩飞秒光纤激光系统研究

Femtosecond fiber laser for high-stability and high-quality pulse compression

物理学报.2015, 64(16): 164207 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.164207>

基于 1064 nm 光纤皮秒种子源的 Nd:YAG 再生放大器

A Nd:YAG regenerative amplifier seeded by 1064 nm picosecond fiber

物理学报.2014, 63(13): 134207 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.134207>

基于相位调制器与 Fabry-Perot 干涉仪的激光多普勒频移测量方法

Laser Doppler shift measuring method based on phase modulator and Fabry-Perot interferometer

物理学报.2013, 62(18): 184206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.184206>

采用环形再生腔结构的飞秒激光啁啾脉冲放大研究

A ring Ti:sapphire regenerative amplifier for high energy chirped pulse amplification

物理学报.2013, 62(10): 104211 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.104211>

高能量环形长腔再生放大啁啾脉冲激光的研究

A long ring regenerative cavity for high energy chirped pulse amplification

物理学报.2013, 62(9): 094209 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.094209>

Ba_{1-x}B_{2-y-z}O₄Si_xAl_yGa_z晶体和频可调谐深紫外飞秒激光器*

孟祥昊¹⁾²⁾ 刘华刚¹⁾ 黄见洪¹⁾ 戴殊韬¹⁾ 邓晶¹⁾ 阮开明¹⁾
陈金明¹⁾ 林文雄^{1)†}

1) (中国科学院福建物质结构研究所, 中国科学院光电材料化学与物理重点实验室, 福州 350002)

2) (中国科学院大学, 北京 100049)

(2015年2月2日收到; 2015年3月5日收到修改稿)

介绍了一种基于新型非线性晶体 Ba_{1-x}B_{2-y-z}O₄Si_xAl_yGa_z 的可调谐深紫外飞秒激光光源. 从理论上分析了基频光和倍频光在通过非线性晶体时所造成的空间走离和群速度失配, 为了补偿空间走离以及波长调谐过程中晶体折射造成的光束偏离现象, 将两块相同的倍频晶体成镜像放置来产生二次谐波. 并调节延迟线的长度来补偿基频光和倍频光之间的群速度失配, 从而提高和频转换效率. 然后通过和频方式进行三倍频和四倍频来突破晶体相位匹配条件的限制, 产生了波长低于 200 nm 的深紫外飞秒激光. 利用钛宝石激光器提供基频光光源, 最终在 250—300 nm, 192.5—210 nm 范围内获得了高重频、可调谐超短脉冲紫外和深紫外激光. 并在基频光波长为 800 nm 时, 得到的二倍频、三倍频和四倍频的功率分别为 1.28 W, 194 mW 和 5.8 mW, 相对于前一级的转换效率依次为 46.14%, 15.16% 和 3%. 采用互相关法测量得到 266.7 nm 紫外激光的脉冲宽度约为 640.4 fs.

关键词: 非线性频率变换, 可调谐, 飞秒, 深紫外激光

PACS: 42.60.-v, 42.65.-k, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.64.164205

1 引言

深紫外相干光源, 尤其是波长可调谐的超短脉冲深紫外激光在现代生物技术、材料加工、超快光谱分析和强场物理等领域有广泛的应用前景^[1,2]. 目前, 近红外波段的超短脉冲激光主要利用块状晶体^[3]或光纤增益介质进行锁模来获得, 而紫外波段的超短脉冲由于受增益介质激发光谱的限制, 还没有办法直接产生. 以锁模激光器作为基频光源, 基于非线性晶体材料二阶非线性效应, 对可见光和近红外光进行多级非线性频率变换仍然是当前获得紫外、深紫外超短脉冲相干光

源的常用方法^[4-6]. 通过非线性频率变换技术获得超短脉冲深紫外激光的关键是深紫外非线性光学晶体, 常用的非线性晶体主要有 LiB₃O₅ (LBO), β-BaB₂O₄ (BBO)^[7,8], KBe₂BO₃F₂ (KBBF)^[9-11]和 Ba_{1-x}B_{2-y-z}O₄Si_xAl_yGa_z (BBSAG) 等. 1998 年, Rotermund 等^[12]利用钛宝石激光器, 以 BBO 作为四倍频晶体, 得到了平均功率为 6 mW, 脉冲宽度为 165 fs 的 193.5 nm 深紫外激光脉冲输出. 2004 年, Kanai 等^[13]同样以钛宝石激光器为基频光源, 结合非线性光学晶体 KBBF, 得到波长 156 nm, 平均功率为 0.8 μW 的深紫外激光输出. BBSAG 作为一种新型非线性光学晶体^[14], 其非线性系数大, 倍频转换效率高, 这些优点可使其在激光非线性光学

* 国家自然科学基金重大科研仪器设备研制专项 (批准号: 11327804)、中国科学院科研装备研制项目 (批准号: yz201341)、福建省科技计划工业科技重点项目 (批准号: 2012H0050)、国家自然科学基金青年科学基金 (批准号: 61205134) 和中国科学院海西研究院“春苗”青年人才专项 (批准号: CMZX-2014-002) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wxlin@fjirsm.ac.cn

领域, 紫外、深紫外变频器件等方面有广阔的前景. 2014年, Wang等^[15]利用单纵模钛宝石激光放大器, 采用BBSAG作为四倍频晶体, 获得了线宽小于0.1 pm, 最高功率达130 mW, 波长在195—205 nm范围内可调谐的窄线宽深紫外脉冲. 然而在飞秒激光领域, BBSAG晶体的性能还有待进一步研究.

本文基于BBSAG非线性晶体, 利用锁模钛宝石激光器作为基频光源, 采用倍频、和频技术, 进行二倍频、三倍频和四倍频实验, 获得了重复频率为80 MHz、波长可调谐的紫外及深紫外飞秒激光脉冲. 从理论上分析了基频光和倍频光在通过非线性晶体时所造成的空间走离和群速度失配. 基于钛宝石飞秒激光系统, 采用两块光轴成两倍相位匹配角放置的BBSAG作为二倍频晶体, 用于补偿空间走离^[16]以及波长调谐过程中晶体折射造成的光束偏离, 通过调整延迟线的长度来补偿基频光和倍频光之间的群速度失配^[17–19], 从而提高和频转换效率并获得宽波段紫外激光输出. 当基频光在750—900 nm时, 最终可以获得波长范围在192.5—210 nm、重复频率为80 MHz、输出功率最

高达到5.8 mW的可调谐超短脉冲深紫外激光.

2 BBSAG 晶体

BBSAG是一种低温相偏硼酸钡掺杂硅、铝、镓单晶体^[14], 拥有优秀的紫外波段透过能力, 截止波长可达到190 nm. 由于BBSAG与BBO晶体的波长透过范围, 双折射率曲线几乎相同, 所以可近似认为BBSAG与BBO晶体的相位匹配角一致. BBSAG晶体在I类相位匹配条件下, 采用直接倍频的方式最终可获得波长为205 nm的近真空紫外激光, 如图1(a)所示, 而在205 nm以下需采用和频的方式来实现. 图1(c)描述了四倍频和频时BBSAG晶体的相位匹配角, 当波长在192.5—210 nm时, 其相位匹配角范围在58.4°—71.9°. 相比于BBO晶体, BBSAG的非线性系数大, 倍频转换效率高, 抗光伤阈值高, 硬度大, 尤其是它克服了BBO潮解性强的缺点, 几乎不潮解的特性使它的应用更加广泛. 基于以上优点, 我们采用BBSAG作为本次实验的倍频、和频晶体.

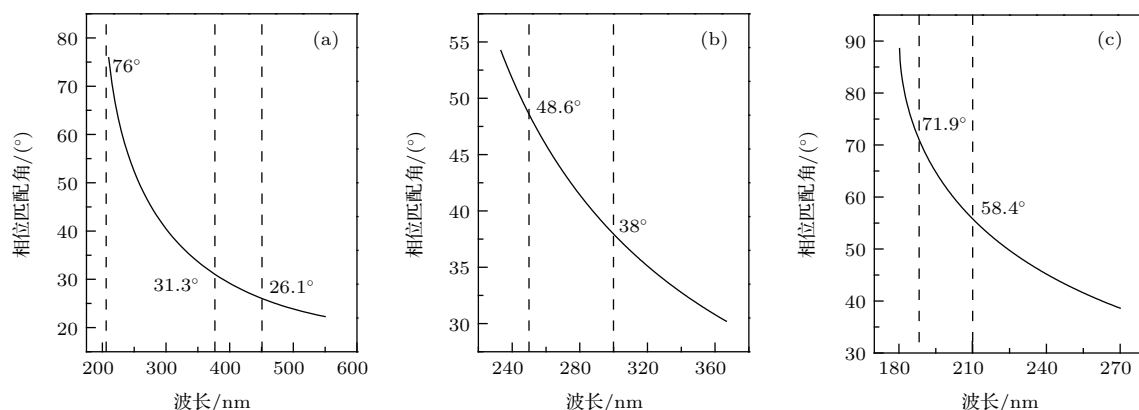


图1 I类相位匹配条件下, BBSAG晶体的相位匹配角 (a) 二倍频; (b) 三倍频; (c) 四倍频

Fig. 1. Phase matching angle of BBSAG for type I: (a) second harmonic generation (SHG); (b) third harmonic generation (THG); (c) fourth harmonic generation (FHG).

3 实验装置

实验装置如图2所示, 其中钛宝石激光器(spectra-physics Mai Tai)提供基频光光源, 中心波长在800 nm, 波长范围在750—900 nm之间, 输出平均功率为2.78 W, 重复频率在80 MHz, 脉冲宽度约为120 fs. L_1 是焦距为75 mm的聚焦透镜, 将基频光源聚焦到二倍频晶体上, 本实验采用新型非线性晶体BBSAG (5.5 mm × 5.5 mm × 1 mm)作为二

倍频转换晶体, 其切割角度满足第I类相位匹配条件($\theta = 29.2^\circ$, $\varphi = 0^\circ$). 实验中, 采用两块相同规格和切割角度的BBSAG晶体成镜像关系放置, 用于补偿空间走离以及晶体折射带来的光路偏移. 基频光和二次谐波经 L_2 透镜准直后, 通过分束片 DM_1 进行分离. 基频光透过分束片 DM_1 进入延迟线系统, 半波片用于调节基频光偏振方向. 通过调节延迟线的长度, 二次谐波高反后与基频光同时进入 DM_2 合束后通过焦距为100 mm的 L_3 后聚焦到三倍频晶体BBSAG (5.5 mm × 5.5 mm × 1 mm)上, 产

生三次谐波, 其中BBSAG晶体($\theta = 44.4^\circ$, $\varphi = 0^\circ$)满足第I类相位匹配条件. 同样采用分束合束的方式, 为达到较好的模场匹配, 将基频光和三次谐波分别通过焦距为85和150 mm的透镜后聚焦到四

倍频和频晶体BBSAG ($5.5 \text{ mm} \times 5.5 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$, $\theta = 64.8^\circ$, $\varphi = 0^\circ$) 上, 采用I类相位匹配方式, 产生四次谐波. 最后用石英三棱镜将基频光, 三次谐波, 四次谐波进行分离.

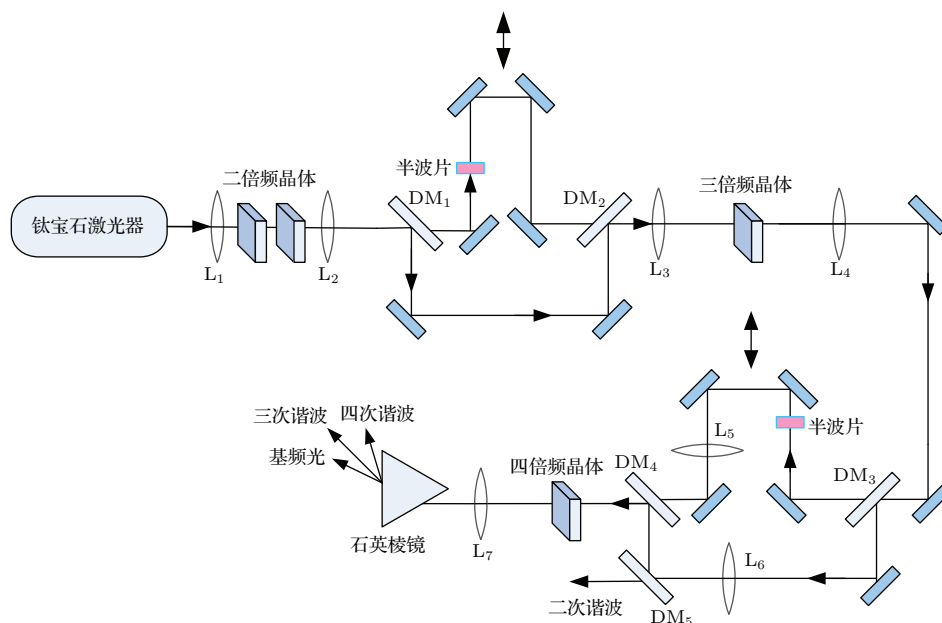


图2 深紫外激光产生实验装置 二倍频晶体: 两块长度为1 mm 的BBSAG; 三倍频晶体: 长度为1 mm BBSAG; 四倍频晶体: 长度为1 mm BBSAG; DM: 分束片(DM₁, DM₂: 高反350—500 nm, 高透700—1000 nm; DM₃, DM₄: 高反375—500 nm, 250—300 nm, 高透700—1000 nm; DM₅: 高反250—300 nm 高透375—500 nm); L: 聚焦镜
Fig. 2. Experiment setup of the deep ultraviolet laser generation. SHG: two 1-mm-long BBSAG crystals; THG: a 1-mm-long BBSAG; FHG: a 1-mm-long BBSAG; DM: dichroic mirrors(DM₁, DM₂: reflection 350–500 nm, transmission 700–1000 nm; DM₃, DM₄: reflection 375–500 nm, 250–300 nm, transmission 700–1000 nm; DM₅: reflection 250–300 nm, transmission 375–500 nm); L: focusing lens.

4 实验结果与分析

BBSAG 走离角比较大, 这使得基频光在通过二倍频晶体产生倍频光时, 晶体内各个位置激发的倍频光在晶体的出射后表面相互错开, 产生的倍频光不能完全相干加强, 基频光与倍频光在晶体内的相互作用距离缩短, 影响了输出光束的质量. 同时由于 o 光和 e 光在非线性晶体中的传播路径不一致, 当它们通过倍频晶体后, 二次谐波相对于基频光会发生空间走离现象, 为了解决空间走离带来的不利影响, 我们采用两块BBSAG作为二倍频晶体, 这两块晶体成 180° 放置, 如图3(a)所示, 两块晶体光轴之间的夹角为 2θ . 基频光进入第一块BBSAG倍频晶体时, 倍频光在能量传播方向上产生走离, 走离角为 ρ_1 , 随后进入第二块BBSAG晶体, 走离角为 ρ_2 , ρ_1 与 ρ_2 的大小相同, 但是分布在基频光传播方向相对应的两侧. 因此, 基频光在通过两块倍频

晶体后, 产生的倍频光与其仍然保持在同一条直线

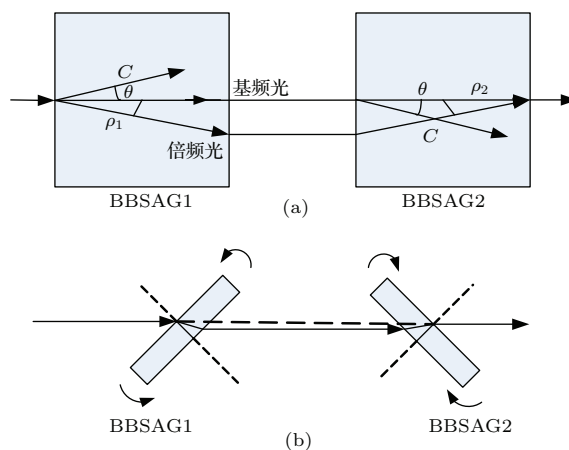


图3 采用两块BBSAG晶体实现空间走离补偿 (a) 基频光和二倍频光之间的空间走离补偿; (b) 折射现象造成的光路偏移

Fig. 3. Compensation of spatial walk-off by two BBSAG crystals: (a) compensation of spatial walk-off between fundamental and second harmonic pulse; (b) light path walk-off due to refraction effect.

上. 当基频光波长大范围调谐时, 由于不同波长的脉冲在非线性晶体中具有不同的折射率, 将两块晶体镜像放置的方式可以解决由折射角不同带来的光路偏移现象, 这样可以保证在波长大范围调谐过程中, 后续参与和频的两束光仍然能够较好地重合, 如图 3(b) 所示. 由于二倍频的转换效率与光强的平方成正比, 选择焦距较短的透镜可以获得较高的倍频转换效率. 然而 BBSAG 晶体在相位匹配角方向上的接受角较小, 焦距较短的透镜产生的光束发散角过大, 从而使得基频光不能被充分利用, 降低了光束质量. 为了兼顾二倍频转换效率及输

出光束质量, 对透镜 L_1 的参数进行了优化及实验分析, 最终选用了焦距为 75 mm 的透镜. 如图 4(a) 所示, 当基频光波长为 800 nm, 平均功率在 2.78 W 时, 最终获得的二倍频功率高达 1.28 W, 转换效率为 46.14%. 由于传统的自相关方法无法测量紫外激光的脉冲宽度, 实验中我们采用互相关法进行测量. 将待测脉冲与基频光进行和频, 得到 266.7 nm 的互相关信号, 通过调节脉冲之间的相对延迟, 测得强度互相关曲线, 结果如图 5 所示, 互相关曲线的半高全宽为 346.3 fs, 最终计算得到二次谐波的脉冲宽度约为 306.2 fs.

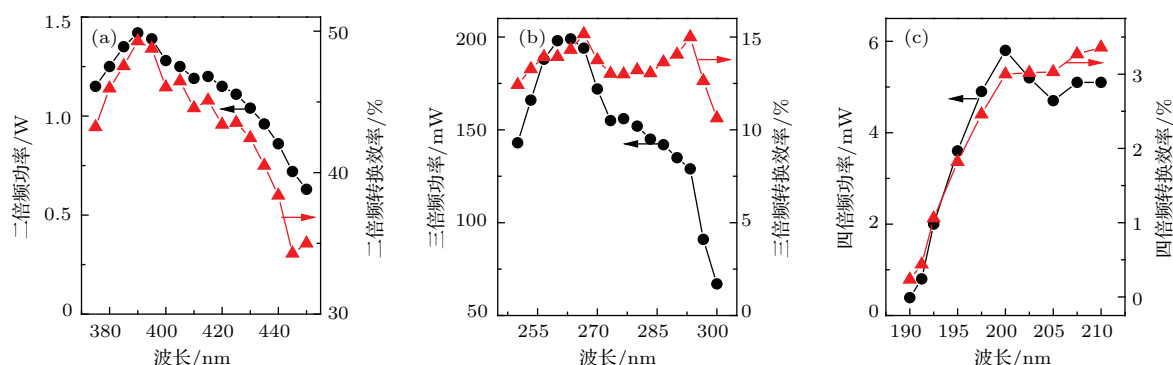


图 4 输出功率和相对于前一级的转换效率 (a) 二倍频; (b) 三倍频; (c) 四倍频

Fig. 4. The output power and conversion efficiency from the previous step: (a) SHG; (b) THG; (c) FHG.

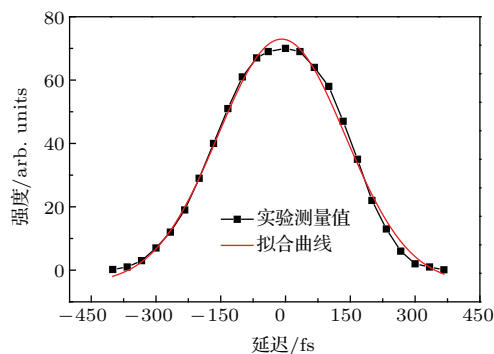


图 5 二次谐波的时间相关测量

Fig. 5. Time correlation measurement of second harmonic pulse.

由于不同波长的光在非线性晶体中的群速度不同, 因此基频光与倍频光在非线性晶体中传播一定的距离以后, 会在时域上产生分离, 倍频光落后于基频光, 造成群速度失配, 降低了三倍频转换效率. 定义群速度失配量 Δt 为

$$\Delta t = \frac{L}{v_1} - \frac{L}{v_2}, \quad (1)$$

(1) 式中 L 表示倍频晶体的长度, v_1 , v_2 分别代表基频光和倍频光在晶体中的群速度. 当基频光波长为

800 nm, 脉宽 120 fs, 二倍频晶体 BBSAG 厚度为 2 mm 时, 对应的群速度失配量 t 为 -386 fs, 已经超过了基频光自身的脉冲宽度. 忽略基频光与二次谐波在聚焦透镜、分束片 DM 和半波片中的群速度差别, 二者到达三倍频和频晶体之前在空间上相差 $115.8 \mu\text{m}$, 已经完全分离, 无法再完成下一步的和频转换. 对于飞秒脉冲来说, 必须补偿群速度失配, 本文在基频光路中插入一个延迟线 (由分束片和高反镜组成), 通过改变基频光上的光程来补偿基频光和二次谐波之间的群速度失配, 最终获得了波长范围在 250—300 nm 的三倍频紫外脉冲. 图 4(b) 描绘了不同波长三倍频的输出功率和相对于二倍频的转换效率, 当输出波长为 266.7 nm 时, 三倍频功率达到 194 mW, 转换效率为 15.16%. 基频光波长范围在 750—900 nm, 通过二倍频晶体后, 基频光与二次谐波之间的群速度失配量从 -460 fs 缩短到 -280 fs, 在空间上相差 $138-84 \mu\text{m}$. 因此在调谐时, 不仅要调整晶体相位匹配角, 还需稍微调整延迟线的距离, 从而得到宽波段的可调谐三倍频紫外脉冲输出. 同样利用互相关法测得 200 nm 时的

强度互相关曲线, 如图6所示, 计算得到三次谐波脉冲宽度约为640.4 fs. 这一宽度远远大于120 fs的基频光宽度, 其主要原因是实验中采用的BBSAG晶体本身引起的色散和倍频过程中群速度失配造成的脉冲展宽.

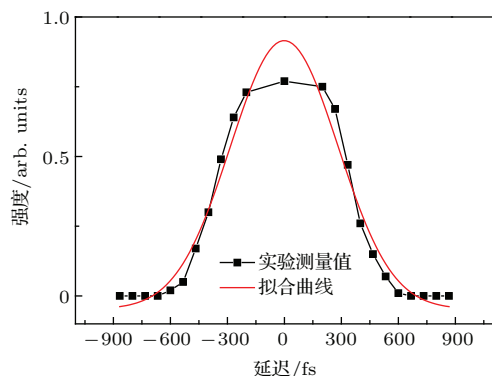


图6 三次谐波的时间相关测量

Fig. 6. Time correlation measurement of third harmonic pulse.

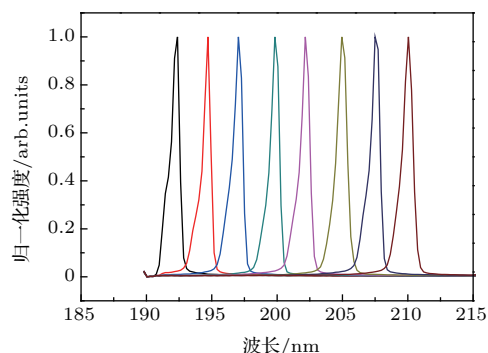


图7 192.5—210 nm波段的光谱图

Fig. 7. The spectral pattern from 192.5 to 210 nm.

四倍频产生同样基于延迟线技术, 实验中为了使参与和频的基频光和三次谐波聚焦光斑较好地匹配, 选用了不同焦距的透镜分别将基频光和三次谐波聚焦到四倍频晶体BBSAG上, 进行四次谐波转换, 得到最大功率为5.8 mW, 波长范围在192.5—210 nm的可调谐深紫外脉冲激光. 用光谱仪(Maya2000 Pro, Ocean Optics)对192.5—210 nm之间的部分光谱进行测量, 得到的光谱如图7所示. 从图4(c)中可以看出, 输出波长在200—210 nm之间时, 四倍频功率基本保持稳定, 保持在5 mW左右. 但是当输出波长小于200 nm时, 输出功率大幅下降, 这是因为在200 nm以下, 晶体相位匹配角较大, BBSAG晶体的非线性系数逐渐变小, 同时波长小于200 nm的紫外激光容易

被空气吸收, 使得输出的四倍频功率偏低. 为了获得更高的和频输出功率, 三倍频和四倍频晶体的长度以及聚焦透镜等镜片的参数可进行进一步优化, 同时降低分束片和反射镜的表面反射等各种损耗, 从而获得更高的转换效率.

5 结 论

BBSAG作为一种新型非线性光学晶体, 其非线性系数大, 倍频转换效率高, 有着较高的抗光伤阈值, 硬度大, 几乎不潮解, 这些优点使其在紫外、深紫外领域有着广阔的应用前景. 利用新型非线性晶体BBSAG, 采用多级倍频、和频方式, 解决空间走离、群速走离等效应的影响, 实现了近红外光和可见光到深紫外的高效率频率变换. 通过改变钛宝石激光器的输出波长, 调整非线性晶体的相位匹配角和延迟线长度, 得到了波长范围在250—300 nm, 192.5—210 nm可调谐超短脉冲紫外和深紫外激光. 当基频光波长在800 nm、功率为2.78 W时, 获得了重复频率为80 MHz、平均功率为1.28 W的二次谐波输出, 转换效率达到46.14%, 脉冲宽度约为306.2 fs, 通过和频方式得到三倍频的功率为194 mW, 三倍频相对二倍频的转换效率为15.16%, 脉冲宽度约为640.4 fs. 同时获得了中心波长为200 nm, 平均功率为5.8 mW的四倍频和频深紫外激光, 相对于前一级的转换效率为3%. 这种可调谐、高重复频率的深紫外飞秒激光在生物检测、紫外光谱技术及微纳加工等领域有着巨大的应用潜力.

参考文献

- [1] Chen C T, Lin Z S 2004 *J. Synth. Crys.* **33** 455 (in Chinese) [陈创天, 林哲帅 2004 人工晶体学报 **33** 455]
- [2] Chen C T, Liu L J 2007 *J. Chin. Ceram. Soc.* **35** 1 (in Chinese) [陈创天, 刘丽娟 2007 硅酸盐学报 **35** 1]
- [3] Gao Z Y, Zhu J F, Tian W L, Wang J L, Wang Q, Zhang Z G, Wei Z Y, Yu H H, Zhang H J, Wang J Y 2014 *Chin. Phys. B* **23** 054207
- [4] He J L, Lu X Q, Jia Y L 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2106 (in Chinese) [何京良, 卢兴强, 贾玉磊 2000 物理学报 **49** 2106]
- [5] Dubietis A, Tamošauskas G, Varanavičius A 2000 *Opt. Lett.* **25** 1116
- [6] Liu H, Gong M L 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 5443 (in Chinese) [刘欢, 巩马理 2009 物理学报 **58** 5443]

- [7] Nebel A, Beigang R 1991 *Opt. Lett.* **16** 1729
- [8] Liu H G, Hu M L, Liu B W, Song Y J, Chai L, Wang Q Y 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 3979 (in Chinese) [刘华刚, 胡明列, 刘博文, 宋有建, 柴璐, 王清月 2010 物理学报 **59** 3979]
- [9] Wang G, Wang X, Zhou Y, Li C, Zhu Y, Xu Z, Chen C 2008 *Appl. Opt.* **47** 486
- [10] Chen C, Togashi T, Suganuma T, Sekikawa T, Watanabe S, Xu Z, Wang J 2002 *Opt. Lett.* **27** 637
- [11] Chen C, Xu Z, Deng D, Zhang J, Wong G, Wu B 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 2930
- [12] Rotermund F, Petrov V 1998 *Opt. Lett.* **23** 1040
- [13] Kanai T, Kanda T, Sekikawa T 2004 *J. Opt. Soc. Am. B* **21** 370
- [14] Chen C Z 2011 *US patent* 2 322 697 [2011-07-14]
- [15] Wang R, Teng H, Wang N, Han H N, Wang Z H, Wei Z Y, Hong M C, Lin W X 2014 *Opt. Lett.* **39** 2105
- [16] Gao L L, Tan H M, Chen Y X 2003 *Laser Technology* **3** 245 (in Chinese) [高兰兰, 檀慧明, 陈颖新 2003 激光技术 **3** 245]
- [17] Gehr R J, Kimmel R W, Smith A V 1998 *Opt. Lett.* **23** 1298
- [18] Huang J, Chang Y, Shen T, Yang Y 2008 *Opt. Commun.* **281** 5244
- [19] Dastmalchi B, Tassin P, Koschny T, Soukoulis C 2014 *Phys. Rev. B* **89** 115123

Tunable deep ultraviolet femtosecond sum frequency laser based on $\text{Ba}_{1-x}\text{B}_{2-y-z}\text{O}_4\text{Si}_x\text{Al}_y\text{Ga}_z$ crystal^{*}

Meng Xiang-Hao¹⁾²⁾ Liu Hua-Gang¹⁾ Huang Jian-Hong¹⁾ Dai Shu-Tao¹⁾ Deng Jing¹⁾
Ruan Kai-Ming¹⁾ Chen Jin-Ming¹⁾ Lin Wen-Xiong^{1)†}

1) (Key Laboratory of Optoelectronic Materials Chemistry and Physics, Fujian Institute of Research on the Structure of Matter, Chinese Academy of Sciences, Fuzhou 350002, China)

2) (University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

(Received 2 February 2015; revised manuscript received 5 March 2015)

Abstract

Tunable coherent deep ultraviolet (DUV) light sources, especially ultrashort pulse DUV lasers have great applications in the fields of time-resolved, material processing, spectroscopy, laser spectroscopy and laser fusion. In the UV region, the best choice of generating the laser pulses in the femtosecond or picosecond regime is the frequency up-conversion technique based on second order nonlinearities. Over the past three decades, quite a lot of nonlinear crystals, such as LiB_3O_5 , $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$, $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ and $\text{Ba}_{1-x}\text{B}_{2-y-z}\text{O}_4\text{Si}_x\text{Al}_y\text{Ga}_z$ have been developed and employed for generating the femtosecond pulses in the blue, ultraviolet, and even the deep-ultraviolet region. A tunable deep ultraviolet femtosecond laser is experimentally studied based on the new nonlinear crystal $\text{Ba}_{1-x}\text{B}_{2-y-z}\text{O}_4\text{Si}_x\text{Al}_y\text{Ga}_z$. It is a kind of low-temperature phase barium metaborate single crystal belonging to a trigonal system, doped with one or more elements selected from Si, Al and Ga. As an optimized $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ crystal, $\text{Ba}_{1-x}\text{B}_{2-y-z}\text{O}_4\text{Si}_x\text{Al}_y\text{Ga}_z$ completely overcomes the shortcomings of deliquescence compared with $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$, and its nonlinear efficiency and optical damage threshold have also been greatly improved. Using two crystals as second harmonic generation is to compensate for the spatial walk-off effect and the light path walk-off due to refraction effect. The optical axis of the second $\text{Ba}_{1-x}\text{B}_{2-y-z}\text{O}_4\text{Si}_x\text{Al}_y\text{Ga}_z$ is twice the phase matching angle with respect to the first one. In a femtosecond regime, short pulse provides high efficient frequency conversion due to their high peak powers, but the group velocity mismatch is a cognitive factor to limit conversion efficiency. It is obvious that after the frequency doubling, the second harmonic pulse and fundamental pulse separate from each other. The second harmonic pulse lags behind the fundamental pulse as they propagate through the crystal and the second harmonic pulse is broadened into a longer pulse duration than the fundamental pulse. The method to compensate for the group velocity mismatch is to adjust the path length between the fundamental and second harmonic pulse by means of time delay line. It consists of beam splitters and mirrors. Tunable deep ultraviolet pulse within a wavelength range from 192.5 to 210 nm is produced, with a maximum average power of 5.8 mW, under a 2.78 W fundamental power. The average power of second harmonic, third harmonic and fourth harmonic are 1.28 W, 194 mW and 5.8 mW at the fundamental wavelength of 800 nm, corresponding to conversion efficiencies of 46.14%, 15.16% and 3% from the previous stage, respectively. The duration of the third harmonic pulse is 640.4 fs at 266.7 nm as measured by the cross-correlation technique.

Keywords: nonlinear frequency conversion, tunable, femtosecond, deep ultraviolet laser

PACS: 42.60.-v, 42.65.-k, 42.65.Re

DOI: 10.7498/aps.64.164205

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11327804), the Instrument Developing Project of the Chinese Academy of Sciences (Grant No. yz201341), the Key Program of Industrial Science and Technology Plan of Fujian Province, China (Grant No. 2012H0050), the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61205134), and the Chunmiao Project of Haixi Institute of Chinese Academy of Sciences (Grant No. CMZX-2014-002).

† Corresponding author. E-mail: wxlin@fjirsm.ac.cn