

中国激光

高重复频率超短激光脉冲产生及频率变换技术发展趋势

郑佳琪¹, 丛振华^{1,2}, 刘兆军^{1,2}, 王 上², 赵智刚^{1,2,3*}

¹山东大学信息科学与工程学院, 山东 青岛 266237;

²山东省激光技术与应用重点实验室, 山东 青岛 266237;

³山西大学量子光学与光量子器件国家重点实验室, 山西 太原 030006

摘要 近些年,法国 Amplitude 公司提出了“吉赫兹(GHz)革命”的口号,主要指发展重复频率在 GHz 量级的超短脉冲激光光源,并将其应用于工业加工、精密测量和生物成像等方面。深紫外激光器具有波长短、分辨率高、光子能量高的特点,因而在芯片缺陷检测、光电子能谱实验等方面具有重要应用,但目前已有的深紫外激光器的重复频率主要集中在千赫兹(kHz)和兆赫兹(MHz)量级,在 GHz 重复频率方面的研究极少,这大大限制了深紫外激光器在上述方面的应用。因此,针对上述研究现状,对高重复频率超短脉冲激光器的产生及频率变换技术的发展趋势展开研究。首先,详细介绍了近红外(NIR)波段 GHz 重复频率激光光源的发展现状;归纳总结了近二十年来国内外深紫外激光光源的研究进展——主要集中于四倍频(266 nm 和 258 nm)、五倍频(213 nm 和 206 nm)以及 193 nm,指出了 GHz 重复频率深紫外脉冲激光领域的空白。接着,对 GHz 近红外激光和 GHz 深紫外激光各自的难点、相互之间的关系进行了探讨。最后,在对高重复频率深紫外激光器未来发展进行展望的同时也指出了其发展过程中亟需解决的问题。

关键词 激光器; 深紫外激光; GHz; 高重复频率; 非线性光学

中图分类号 TN248

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202148.1201008

1 引 言

脉冲宽度在皮秒、飞秒量级的超快激光光源,因其超快特性在光电子显微镜^[1]、超连续谱的产生^[2]和材料加工^[3]等方面具有重要的应用价值。一般而言,超短脉冲与材料作用时间极短,在材料内部形成的热扩散距离短,从而显著降低了热影响区的形成,能够精确且无热损伤地烧蚀材料,实现“冷加工”,在微纳加工^[4-5]和超硬材料加工^[6]中具有独特优势。重复频率为千赫兹(kHz)和兆赫兹(MHz)量级的超快激光器,当平均功率较低时,激光加工吞吐量低,不适用于工业化的生产制造;若大幅提升平均功率会扩大热影响区,给材料带来不必要的损伤,便会失去飞秒激光工业加工的优势。

重复频率吉赫兹(GHz)脉冲的出现可以有效解

决这一问题。2016 年,土耳其比尔肯大学 Kerse 等^[7]报道了一种烧蚀冷却技术,在 GHz 量级的极高重复频率下,利用飞秒激光“脉冲串”模式(Burst-Mode),在先前脉冲沉积的余热未从加工区域扩散之前对目标材料进行烧蚀,不仅能够提高烧蚀效率,还能保证优秀的加工质量。

此外,重复频率为 GHz 量级的飞秒激光光源在生物光子学领域也有着独特优势:采用飞秒脉冲激光的多光子吸收光学显微镜可实现较大的穿透深度和较高的空间分辨率,而传统的低重复频率飞秒激光会产生严重的光漂白和光毒效应^[8];重复频率为 GHz 量级的飞秒脉冲由于脉冲能量低,降低了对细胞的损伤,并且超高的重复频率提高了信号速率和成像速度,从而显著改善了生物成像的质量。在精密光学测量方面,基于 GHz 甚至更高重复频率的飞

收稿日期: 2021-02-23; 修回日期: 2021-03-10; 录用日期: 2021-04-12

基金项目: 国家自然科学基金(118041292)、教育部联合基金(6141A02022413,6141A02022421)、山东省重点研发计划(2019JMRH0111)、山东省自然科学基金面上项目(ZR2020MF114)、山东大学杰出中青年学者计划、山东大学齐鲁青年学者计划、山西大学量子光学与光量子器件国家重点实验室开放课题(KF202007)

* E-mail: zhigang@sdu.edu.cn

秒脉冲光学频率梳(OFC)技术可提供较好的空间精度和时间分辨率^[9],对激光测距^[10]、光学原子钟^[11]和超快光谱分析^[12]等技术的实现起到了推动作用。综上所述,重复频率在 GHz 量级的飞秒脉冲激光器在加工、医疗和精确测量等领域中有极大的市场需求和良好的发展前景。

深紫外(DUV)激光指波长在 190~350 nm 的相干光源,与常规红外波段激光相比,该波段的激光具有波长短、能量密度集中和成像分辨率高等特点^[13],在半导体晶圆检测和角分辨光电子能谱(ARPES)方面有着重要应用。对于半导体晶圆检测系统,其检测灵敏度(也即:散射光强度)与所采用光源波长的四次方成反比^[14],因此通过采用波长更短的光源可显著提高检测系统的灵敏度;同时,为了避免对晶圆表面造成损伤,连续(CW)或者高重复频率准连续体的深紫外光源更具优势。ARPES 是一种通过光电效应研究材料电子结构的技术手段,在研究材料能带结构方面起着至关重要的作用^[15]。在激光 ARPES 中,光源通常采用非线性频率变换技术产生的 DUV 激光,为了确保较高的光子通量和转换效率,一般要求基频激光具有较高的峰值功率,这意味着其重复频率通常较低;但实验时间、信号信噪比、空间电荷效应等因素又要求光源具有较高的重复频率。这样的矛盾使得 GHz 量级的高重复频率、高光子通量的 DUV 激光光源很少被报道,目前已报道的 DUV 光源,其重复频率大都集中在 kHz~MHz 量级。

从激光技术的角度讲,高功率 GHz 重复频率近红外(NIR)飞秒脉冲激光器的难点在于 GHz 种子光源的产生,对于 GHz 重复频率的放大器而言,由于单脉冲能量小、峰值功率低,放大时相对容易获得较高的平均功率;对于 GHz 重复频率 DUV 飞秒脉冲激光光源,难点不在于基频光的获得,而在于基频光的峰值功率不高、所用的非线性介质不能太厚,进而导致非线性频率转换效率低。所以,综合考虑 GHz 重复频率 NIR 飞秒激光和 DUV 飞秒激光的特殊应用场合及其制备的难易程度,本文总结了 NIR 波段 GHz 重复频率激光器的发展现状、列举了常见的非线性光学晶体,重点对 1064 nm (Nd:YAG)和 1030 nm (Yb:YAG)的四倍频(FHG, 266 nm 和 258 nm)和五倍频(FiHG, 213 nm 和 206 nm)以及 193 nm DUV 激光器的国内外研究进展进行了综述,最后在对高重复频率 DUV 激光器未来发展进行展望的同时也指出了其

发展过程中亟需解决的问题。

2 GHz 重复频率近红外飞秒脉冲激光器发展现状

目前,产生重复频率为 GHz 的 NIR 飞秒脉冲激光主要有三种方式:腔外滤波、振荡器直接输出和多次分频叠加技术。

腔外滤波通常采用法布里-珀罗(F-P)腔,利用 F-P 干涉仪的多光束干涉原理,将输入光的纵模滤掉一部分从而实现重复频率的倍增。然而,这种方法存在两个问题:若 F-P 腔的线宽过宽,本该滤掉的临近纵模会透过,产生边模泄露的问题;另外, F-P 腔会产生色散,使纵模间隔不均匀,本该透过的模式可能会偏离透过峰^[16]。由振荡器直接产生 GHz 重复频率的 NIR 飞秒脉冲激光主要有三种方式:谐波锁模、基于半导体可饱和吸收镜(SESAM)的被动锁模和克尔透镜锁模(KLM)。

谐波锁模技术常用于光纤激光器中,当脉冲的峰值功率受到限制,提高泵浦光功率会导致脉冲分裂为多个孤子随机分布在谐振腔内^[17]。美国斯坦福大学 Becker 等^[18]提出通过调整谐振腔的偏振态,使得这些脉冲具有相同的时间间隔,从而实现锁模脉冲重复频率的提高。2006 年,美国康奈尔大学应用物理系周士安等^[19]在基于非线性偏振演化(NPE)的掺镱锁模光纤激光器中实现了最高 35 次谐波的锁模脉冲输出,基频光的重复频率为 42.9 MHz,通过增加泵浦功率和调整波片改变腔内偏振态,在 1035 nm 波长处实现了高达 1.5 GHz 的重复频率。2011 年,波兰弗罗茨瓦夫理工大学 Sobon 等^[20]报道了基于 NPE 锁模的掺镱共掺双包层光纤激光器,基频光的重复频率为 15.8 MHz,最终在 634 次谐波处实现了稳定运行,重复频率高达 10 GHz,输出平均功率为 300 mW。2013 年,德国马克斯普朗克研究所 Kang 等^[21]报道了工作在 337 次谐波下的被动锁模掺镱光纤激光器,基频光的重复频率为 5.35 MHz,输出脉冲的重复频率为 1.8 GHz,该谐波锁模激光器可在 60 mW 的低泵浦功率下稳定工作。2013 年,法国勃艮第大学 Lecaplain 等^[22]通过无源谐波锁模技术,在掺镱光纤激光器中获得重复频率高达 22.2 GHz 的飞秒激光输出。利用谐波锁模获得高重复频率的脉冲较为简单,但缺点是产生的脉冲幅度均匀性差,且时间抖动较大。

SESAM 被动锁模和 KLM 两种技术常被应用于钛宝石飞秒激光器和激光二极管(LD)泵浦的全

固态飞秒激光器中。目前在 $1\ \mu\text{m}$ 波段, SESAM 被动锁模的全光纤激光器重复频率可达 $12\ \text{GHz}$ ^[23]。但由于增益光纤长度较短, 对泵浦光不能充分吸收, 激光在腔内运行过程中 SESAM 会积累较多热量, 当泵浦功率较高时, SESAM 容易损坏; 另外, 为了获得更高的重复频率, SESAM 增益介质需要更高的掺杂浓度, 故 SESAM 被动锁模激光器的重复频率难以大幅提升。KLM 技术的优点是重复频率高、噪声低、光谱宽^[24], 通常 KLM 都采用“Bow-tie”环形腔, 如图 1(a) 所示, 这种装置输出的脉冲重复频率极限为 $20\ \text{GHz}$ ^[16]。为了进一步提高 KLM 的重复频率, 2019 年日本东京大学物性研究所小林洋平(Kobayashi)教授团队^[25]提出一种更紧凑的线性腔结构, 装置如图 1(b) 所示, 通过这种腔型, 他们在 $1080\ \text{nm}$ 的波长处获得重复频率高达 $23.8\ \text{GHz}$ 的脉冲激光, 对应的往返腔长为 $12.5\ \text{mm}$, 这是目前在 $1\ \mu\text{m}$ 波段 KLM 激光器能达到的最高重复频率。

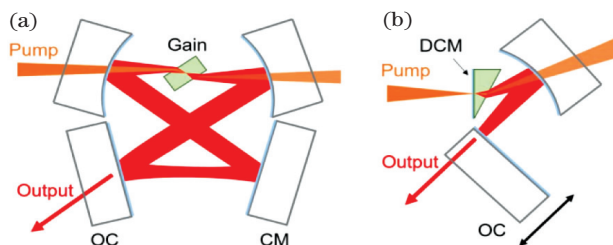


图 1 克尔透镜锁模谐振腔示意图^[25]。

(a) Bow-tie 环形腔; (b) 提出的紧凑型线性腔结构

Fig. 1 Schematic diagram of Kerr lens mode-locked cavity^[25]. (a) Bow-tie ring cavity; (b) proposed compact linear cavity structure

由于 KLM 激光器和 SESAM 被动锁模激光器的重复频率与谐振腔的腔长成反比关系, 为获得 GHz 的超高重复频率, 缩短谐振腔的腔长是唯一的办法。然而, 受谐振腔中光学元件尺寸的限制, 腔长越短, 锁模难度越高, 目前报道的重复频率已接近极限, 要想实现重复频率的跨越式提升, 需要借助增益高的面发射半导体材料和可饱和吸收器。

2004 年, 法国傅里叶大学 Gherman 等^[26]报道了用半导体面发射芯片和 SESAM 构成的 $1.12\ \text{GHz}$ 重复频率的光泵浦垂直外腔面发射锁模半导体激光器 (VECSEL), 并将其作为腔增强光谱学研究的光源。2005 年, 瑞士联邦工业大学 Aschwanden 等^[27]在 $960\ \text{nm}$ 处获得重复频率为 $10\ \text{GHz}$ 的 VECSEL 脉冲激光, 其平均功率高达 $1.4\ \text{W}$; 2006 年, 他们又在该波段实现重复频率高达 $50\ \text{GHz}$ 的输出, 平均功率为 $100\ \text{mW}$ ^[28]。通过 SESAM 被动锁模, VECSEL

有望获得超过 $100\ \text{GHz}$ 的超高重复激光输出。

除了以上方法, 重复频率为 kHz~MHz 的脉冲可通过多次分频叠加技术实现重复频率的倍增, 从而获得 GHz 重复频率的脉冲。在实验中通常采用 $(N+1)$ 个 50/50 耦合器与 N 个光纤延迟线的级联装置来实现, 低重复频率的脉冲经过该装置后, 重复频率被提高至 2^N 倍。2016 年, 土耳其比尔肯大学 Kerse 等^[29]采用六个级联 50/50 耦合器, 对重复频率为 $108\ \text{MHz}$ 的种子激光进行分频, 装置如图 2 所示, 成功在 $1\ \mu\text{m}$ 波段获得重复频率高达 $3.5\ \text{GHz}$ 的脉冲激光, 相比种子源, 输出光的重复频率提高了 32 倍。2020 年, 法国 Amplitude 公司 Bonamis 等^[30]开发出平均功率高达 $100\ \text{W}$ 的 GHz 飞秒脉冲激光器, 在 $100\ \text{kHz}$ 的重复频率下可提供高达 $1\ \text{mJ}$ 的总脉冲能量, 脉冲串内子脉冲的重复频率为 $3.52\ \text{GHz}$ 。被动锁模激光器在 $1030\ \text{nm}$ 处产生重复频率为 $0.88\ \text{GHz}$ 、脉冲宽度为 $310\ \text{fs}$ 的类孤子脉冲, 引入两级 50/50 的耦合器和光纤延迟线将重复频率提升至 $3.52\ \text{GHz}$, 而后脉冲经过 Yb 晶体放大器获得 $100\ \text{W}$ 的输出功率。并且后续的实验研究表明, 通过控制脉冲宽度和脉冲串中子脉冲的数量, 可获得最佳的烧蚀效率和最优的加工质量, 进一步证实了 GHz 重复频率 NIR 飞秒脉冲激光在加工领域的应用前景。

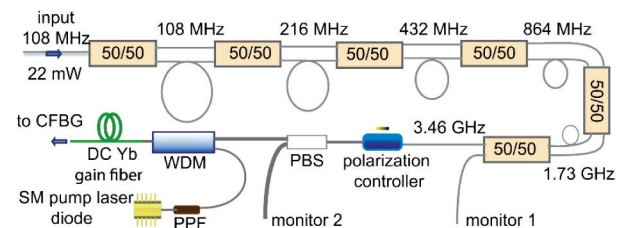


图 2 $3.5\ \text{GHz}$ 激光器重复频率倍增装置^[29]

Fig. 2 Schematic diagram of $3.5\ \text{GHz}$ laser repetition rate multiplier^[29]

然而, 光纤耦合器和光纤延迟线的级联组合存在以下弊端: 由于光纤耦合器的耦合效率无法严格对称, 光纤长度难以精确控制, 进而产生的脉冲难以严格保证能量相同和时间间隔相等且超短脉冲在光纤内产生的色散难以控制。为解决这一问题, 在 $1.55\ \mu\text{m}$ 波长处, 日本电气通信大学中岛(Nakajima)等^[31-32]采用一种含色散补偿的光纤环形腔滤波装置对脉冲激光进行重复频率倍增, 装置如图 3 所示, 光纤环形腔由单模光纤、色散补偿光纤和两个光纤耦合器组成, 掺铒光纤激光器产生种子光, 脉冲激光通过环形器、掺铒光纤放大器和偏振控制器进入光纤环形腔, 而后经偏振控制器和掺铒光

纤放大器输出,进入光纤环形镜,脉冲经由环形镜反射并再次回到环形腔中,并由环形器输出。其中,谐

振腔在 1550 nm 波长附近产生的色散由腔内的色散补偿光纤补偿。

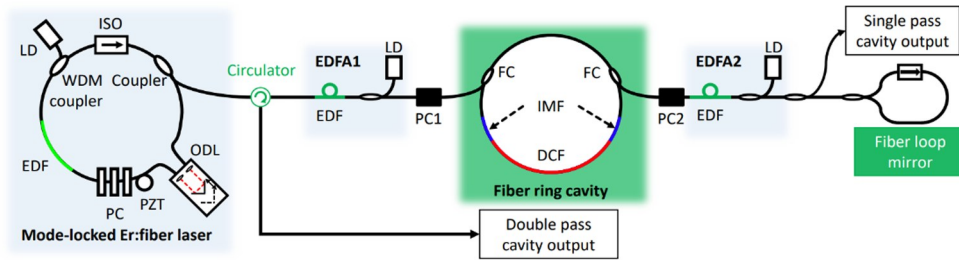


图 3 含色散补偿的光纤环形腔滤波装置示意图^[31]

Fig. 3 Schematic diagram of fiber ring cavity filter device with dispersion compensation^[31]

对于 1 μm 波长,立陶宛 Ekspla 公司 Bartulevicius 等^[33]利用啁啾光纤光栅补偿色散机制,于 2020 年提出采用有源光纤环路来实现重复频率的倍增,如图 4 所示,环路由光环形器、掺镱光纤和声光调制器(AOM1)组成,IN1 端口输入的脉冲经 OUT2 端口传送到环路中,经 N 次循环后,环路输出含有 (N+1) 个子脉冲的脉冲串。AOM1 用于控制脉冲串内的子脉冲数,脉冲幅度由环路损耗和掺镱光纤的增益决定,若环路中的损耗大于增益,脉冲串包络的形状如图 5(a)所示呈衰减趋势;若增益大于损耗,包络形状如图 5(b)所示呈上升趋势。光纤布拉格光栅(CFBG)可补偿环路中的色散,避免各个脉冲出现相位差,使脉冲串内的子脉冲得以均匀分布。这种有源光纤环路的装置可调节 GHz 脉冲的幅度和间隔,从

而获得振幅平稳、时间间隔均匀的 GHz 脉冲。

北京大学张志刚教授课题组在直接由光纤激光器产生 GHz 重复频率的飞秒脉冲方面的研究做出了开创性的工作。早在 2014 年,该课题组的李辰等^[34]发布了 1 GHz 飞秒光纤激光器的成果,凭借创新的器件和紧凑的结构,得到脉冲宽度小于 60 fs、直接输出功率大于 600 mW 的掺镱光纤激光器,该结果接近固体激光器的水平,并由此成功研制 GHz 量级的飞秒光纤频率梳^[35]。2020 年,他们又报道了将其放大到 100 W 量级的成果,采用光栅对脉冲进行压缩,获得的脉冲宽度仅为 233 fs^[36]。

华南理工大学杨中民教授课题组也对 GHz 重复频率光纤激光器的研发做出了突出贡献。2012 年,该课题组^[37]采用高掺杂的掺镱磷酸盐玻璃光纤在 1025 nm 处获得 3 GHz 高重复频率输出,脉冲宽度为 206 fs。2017 年,程辉辉等^[38]利用高掺杂的掺镱光纤在 1 μm 获得 5 GHz 的重复频率。2018 年,该课题组的周毅等^[39]利用 SESAM 被动锁模技术在 1.5 μm 处获得 3.2 GHz 重复频率的光纤激光器。近些年,随着更高掺杂浓度的磷酸盐玻璃光纤、更短的光纤长度和更紧凑的激光器结构的出现,重复频率大于 10 GHz 的光纤激光器也随之产生。2019 年,该课题组^[40]报道了重复频率高达 12.5 GHz 的掺镱光纤激光器,采用 SESAM 被动锁模的方式,谐振腔长度仅为 7.6 mm,这一结果是 SESAM 被动锁模光纤激光器目前在 1 μm 波段处能达到的最高重复频率。

最近,本课题组^[41]利用长度为 2.09 cm 的掺钕光纤作为增益介质,通过 SESAM 被动锁模获得重复频率高达 5 GHz 的光纤激光器,中心波长在 1561 nm 处,脉冲宽度为 3.86 ps。并且通过采用两种不同调制深度的 SESAM 分别进行锁模,证实了 SESAM 的调制深度在实现高重复频率连续锁模中起到了重要作用,采用较低调制深度的 SESAM 可以获得更高的

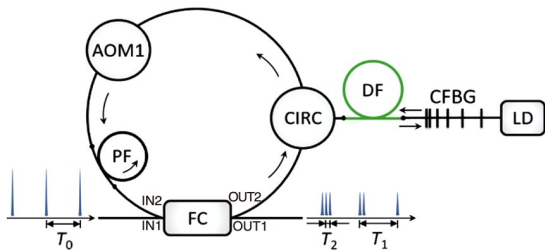


图 4 有源光纤环路示意图^[33]

Fig. 4 Schematic of active fiber loop^[33]

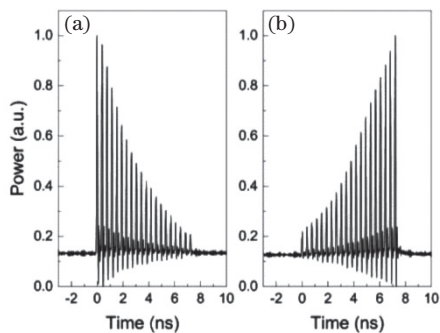


图 5 有源光纤环路内脉冲串包络整形示意图^[33]

Fig. 5 Schematic of pulse trains envelope shaping in active fiber loop^[33]

重复频率和更加稳定的连续锁模状态。

将以上实验结果及其他 1 μm 波段大功率 GHz 重复频率飞秒脉冲激光器的代表性结果汇总于表 1 中,由表中数据可知,目前公开报道的 1 μm 波段 GHz 飞秒脉冲激光器平均功率可达 130 W,脉冲宽度为百飞秒量级^[42]。另外,国内武汉安扬激光公司在 1064 nm 波长处研发出重复频率为 1 GHz、平均输出功率超过 1 kW 的飞秒激光器,并已做成产品投入市场使用。GHz 飞秒脉冲激光在加工质量和加工效率这两个方面,均优于 MHz 和 kHz 重复频率的脉冲激光器,这一结论已在实际中得到验证^[43]。

表 1 1 μm 波段 GHz 重复频率激光器研究进展^[30, 36, 42, 44-51]

Year	Wavelength / nm	Pulse width	Output power /W	Repetition rate /GHz	Ref. No.
2010	1050	180 fs	20	1.3	[44]
2011	1050	130 fs	5	1.6	[45]
2012	1040	890 fs	110	1.3	[46]
2014	1050	300fs	72	1.6	[47]
2018	1030	800 fs—2ps	20	1—18	[48]
2018	1030	/	100	1.76	[49]
2019	1030	480 fs	100	0.87	[50]
2020	1057	473 fs	108	1.2	[51]
2020	1057	868 fs	130	1.2	[42]
2020	1030	310 fs	100	3.52	[30]
2020	1030	233 fs	97	1.08	[36]

3 高重复频率深紫外激光器发展现状

晶圆表面检测和 ARPES 技术对 GHz DUV 脉冲激光有着强烈需求,这些需求推动了 GHz NIR 光和 GHz DUV 光的发展。由图 6 可知,GHz 重复频率种子光的产生较为困难,常通过两种方式获得:直接产生或由低重复频率的种子光变频获得。由于重复频率足够高,GHz 脉冲激光的峰值功率相对较低,放大过程中非线性效应较弱,平均功率的放大较为容易,

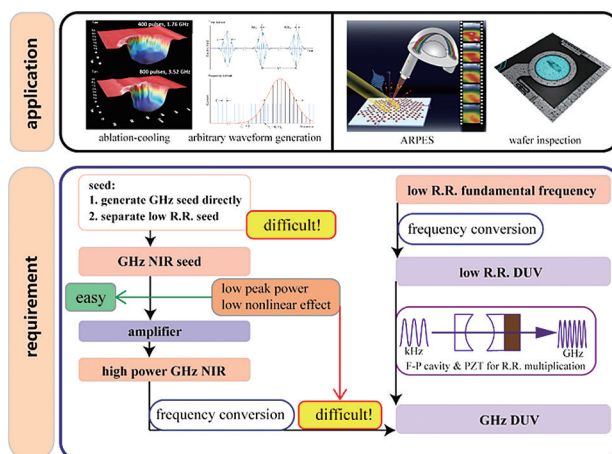


图 6 GHz NIR 光及 GHz DUV 光产生示意图

Fig. 6 Schematic diagram of GHz NIR and GHz DUV laser generation

所以获得大功率 GHz NIR 脉冲激光并不困难。但这一优势恰好是非线性频率变换的弱势,较低的峰值功率很难获得理想的波长转换效率。另外,飞秒 DUV 激光频率变换时所需的非线性晶体厚度很薄,这进一步限制了转换效率的提升,故大功率的 GHz 重复频率 DUV 激光难以获得,目前这一领域有待开发。

固体 DUV 激光器以非线性频率变换为基础。在相位匹配条件下,倍频光转换效率与非线性晶体长度的平方成正比,晶体越长,转换效率越高,因此,选择长度合适且有效非线性系数较高的晶体,可提高倍频光的输出功率^[52]。随着材料的发展,研究人员发现了一系列以 β-BaB₂O₄ (BBO)、LiB₃O₅ (LBO)、CsLiB₃O₁₀ (CLBO)、K₂Al₂B₂O₇ (KABO) 和 KBe₂BO₃F₂ (KBBF) 为代表的优质非线性光学晶体,并成功实现商业化。非线性晶体的不断出现,使激光波长不仅可通过倍频、和频获得 DUV 至真空紫外激光,还能利用差频得到红外至远红外激光。现将常用于产生 DUV 光的非线性晶体及其性质列于表 2 中^[53-59]。

表 2 常见非线性晶体的性质^[53-59]

Table 2 Properties of common nonlinear optical crystals^[53-59]

Crystal	LBO	BBO	CLBO	KABO	KBBF	RBBF
Lattice structure	orthorhombic system	trigonal system	tetragonal system	trigonal system	trigonal system	trigonal system
Space group	Pna2 ₁	R3C	/	P321	R32	R32
Point group	mm2	/	/	/	/	/
Lattice constant / (10 ⁻¹⁰ m)	a=8.4473 b=7.3788 c=5.1395	a=12.532 b=12.532	a=10.494 b=10.494 c=8.939	a=8.53 b=8.53 c=8.409	a=4.427 b=4.427 c=20.356	a=4.4341 b=4.4341 c=19.758
Unit numbers in cell	z=2	z=6	z=4	/	/	/
Melting point /°C	834	1095	844.5	1109	1030	1030
Mohs hardness	6	4	4	5.5—6.5	2.66	2.66
Mass density / (g·cm ⁻³)	2.47	3.85	2.45	2.47	2.41	2.40
Hygroscopicity	low	low	high	low	low	low
Wavelength range /nm	160—2600	189—3500	180—2750	180—3600	155—3660	160—3550

3.1 四倍频 (266 nm 和 258 nm) 深紫外激光器研究进展

FHG 的原理如下: 频率为 ω 的基频光经非线性晶体进行二倍频 (SHG), 获得频率为 2ω 的二次谐波, 该二次谐波再次经非线性晶体进行 FHG, 进而获得频率为 4ω 的四次谐波。目前, SHG 普遍用非临界相位匹配的 LBO 晶体来实现, LBO 晶体具有高损伤阈值、高非线性系数和宽传输频带等优点, 且非临界相位匹配使得 LBO 晶体在 SHG 过程中不会产生走离角, 适合激光进一步的频率转换。FHG 通常采用 LBO、BBO 和 CLBO 晶体, 其中 LBO 晶体对 DUV 光有吸收作用, 在 258 nm 和 266 nm 这两个波长处难以制造出长期稳定运行的大功率激光器。高平均功率、高重复频率的 DUV 激光器常采用 BBO 或 CLBO 晶体。CLBO 晶体接受角大, 走离角小, FHG 转换效率较高, 常用于大功率 DUV 激光的产生, 但该晶体极易潮解, 需要在密封箱内使用; 另外, 目前晶体的价格很高。与 CLBO 晶体相比, BBO 晶体的市场更为成熟, 价格低且晶

体的有效非线性系数高; 除此之外, 在 266 nm 波长处 BBO 晶体的透过率略高于 CLBO 晶体。然而, BBO 晶体的走离角较大, 只有光束质量好的基频光才能获得理想的转换效率和光束质量。

在过去的 20 年, 国内外研究机构针对 266 nm 和 258 nm 波长的 DUV 激光器研究较多, 为了便于比较, 将这些结果按脉冲宽度 (纳秒、皮秒和飞秒) 进行分类, 并对其中的代表性结果进行详细分析。

将近 20 年 FHG 纳秒 DUV 脉冲激光器的研究结果汇总于表 3^[60-82]。2003 年, 日本大阪大学西冈 (Nishioka) 等^[67] 报道了在 266 nm 处输出功率高达 40 W 的 DUV 激光器, 基频光由重复频率为 7 kHz、光束质量因子 M^2 约为 10、脉冲宽度为 80 ns、平均功率为 200 W 的 LD 泵浦调 Q 的 Nd:YAG 绿色激光器产生, 通过 15 mm 长的 I 类角度相位匹配 CLBO 晶体, 获得了平均功率高达 40 W 的 266 nm DUV 激光。通过分析表 3 中的数据可知, 在 266 nm 的波长处, 这一结果是纳秒量级平均功率最高的 DUV 激光器。

表 3 258 nm 和 266 nm 纳秒 DUV 激光器研究进展^[60-82]

Table 3 Research progress of 258 nm and 266 nm nanosecond DUV lasers^[60-82]

Year	Fundamental wavelength /nm	Fundamental power /W	Output wavelength /nm	Output power	Pulse width /ns	Repetition rate	Ref. No.
2000	532	106	266	20.5 W	80	10 kHz	[60]
2000	1064	1.22	266	63 mW	32	12.5 kHz	[61]
2001	532	40	266	12 W	70	1 kHz	[62]
2002	1064	7	266	2.1 W	22	5 kHz	[63]
2002	1064	0.32	266	69 mW	0.97	3.7 kHz	[64]
2002	1064	8.74	266	196 mW	12	18 kHz	[65]
2003	1547	3.1	258	800 mW	1	200 kHz	[66]
2003	532	200	266	40 W	80	7 kHz	[67]
2006	532	120	266	28.4 W	80	10 kHz	[68]
2009	1064	81	266	14.8 W	10	100 kHz	[69]
2009	1064	52	266	1.9 W	120	7.5 kHz	[70]
2009	1031	40	258	14 W	1	5 MHz	[71]
2010	1064	14.3	266	374 mW	5	20 kHz	[72]
2010	1064	2.4	266	289 mW	59.8	20 kHz	[73]
2011	1064	22	266	2.1 W	100	5 kHz	[74]
2011	1064	80	266	5.05 W	22.5	65 kHz	[75]
2012	1064	150	266	3 W	10	10 kHz	[76]
2013	1064	18.8	266	1.82 W	16	30 kHz	[77]
2013	1030	22	258	3.2 W	15	30 kHz	[78]
2016	1064	24.5	266	3.3 W	1.5	1 MHz	[79]
2016	1064	10	266	1.85 W	1.7	20 kHz	[80]
2016	1030	3.6	258	1.1 W	2.5	14.5 kHz	[81]
2017	1030	35	258	10.5 W	3	10 kHz	[82]

与纳秒 DUV 激光器相比, 由于脉冲宽度更短, 皮秒激光器在材料加工时产生的热损伤更小, 并且

大功率皮秒 DUV 激光的获得并不困难, 故在精密加工领域, 皮秒 DUV 激光器的应用前景更为广阔。

将近 20 年的结果总结于表 4 中^[83-94],分析表中数据可知,目前重复频率在 kHz~MHz 皮秒量级的 FHG DUV 激光器输出功率多在 1 W 以上,最高可达 50.1 W。重复频率在 GHz 的 FHG 皮秒脉冲

DUV 激光器平均功率在 mW 量级,随着激光放大技术的发展,平均功率将会得到进一步的提升,皮秒 DUV 激光器在加工领域将会有更大的应用潜力。

表 4 258 nm 和 266 nm 皮秒 DUV 激光器研究进展^[83-94]

Table 4 Research progress of 258 nm and 266 nm picosecond DUV lasers^[83-94]

Year	Fundamental wavelength /nm	Fundamental power /W	Output wavelength /nm	Output power	Pulse width /ps	Repetition rate	Ref. No.
2000	1064	27.4	266	4.5 W	7	82 MHz	[83]
2011	1064	22	266	0.93 W	25	78 MHz	[84]
2013	1064	15	266	4.5 W	72	100 kHz	[85]
2015	1030	27.4	258	2.74 W	8.4	1 kHz	[86]
2015	1064	20	266	2.9 W	20	80 MHz	[87]
2016	1030	60	258	6 W	4	100 kHz	[88]
2018	1064	34	266	1.6 W	25	80 MHz	[89]
2018	1030	10	257	3 mW	1.8	3 GHz	[90]
2019	1030	33	258	7.6 W	1.5	77 kHz	[91]
2019	1064	260	266	50.1 W	15	1 MHz	[92]
2020	1030	270	258	20 W	1.2	10 kHz	[93]
2020	1064	/	266	14 W	13	200 kHz	[94]

在 FHG 皮秒 DUV 激光器中,日本 Spectronix 公司^[85]于 2013 年利用光纤激光器多级放大系统,通过 LBO 晶体和 CLBO 晶体获得重复频率为 100 kHz、平均功率为 4.5 W 的 266 nm 四次谐波。基频光的平均功率为 15 W,脉冲宽度为 72 ps,波长为 1064 nm,基频光到 DUV 光的转换效率高达 30%。

2018 年,德国电子同步加速器研究所 Hartl 团队^[90]在 257.5 nm 波长处获得重复频率高达 3 GHz 的 DUV 皮秒脉冲,装置如图 7 所示。该系统由平

均功率 10 mW 的连续种子激光器、Yb 光纤放大器、四个电光调制器、色散补偿装置和频率转换装置组成。波长在 1030 nm 处的基频光平均功率为 10 W,峰值功率为 1.8 kW,脉冲能量为 3.3 nJ,峰值功率和脉冲能量过低,这对四次谐波的产生是很大的挑战。他们利用 15 mm 长的 LBO 晶体在 515 nm 波长处获得 600 mW 的平均功率,而后经 5 mm 长的 CLBO 晶体获得 257.5 nm 的 DUV 脉冲激光,重复频率高达 3 GHz。

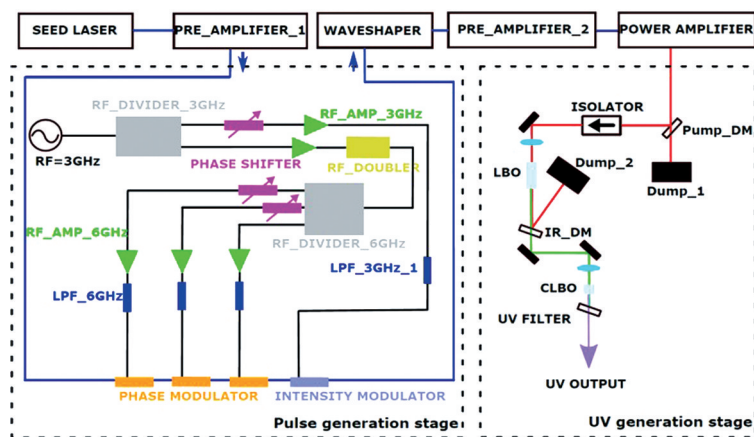


图 7 3 GHz 257 nm DUV 激光器示意图^[90]

Fig. 7 Schematic of 3 GHz 257 nm DUV laser^[90]

基于非线性频率变换的 DUV 激光器存在一个难题,长时间工作时,DUV 激光会对倍频晶体造成损伤甚至整体的光学降解。针对这一问题,通常将晶体放于调节装置中,当晶体某个面出现点状损伤

时,调节晶体位置移走损伤点,从而提高晶体的利用率。日本 Spectronix 公司解决了这一问题,他们通过提高基频光的峰值功率,使基频光不必强烈聚焦于倍频晶体就能获得较高的转换效率,从而避免了

自热效应导致的晶体损伤,延长了晶体的使用寿命,采用这种方式研发出的 DUV 激光器能够稳定工作超过 5000 h。

2020 年,日本 Spectronix 公司^[94]通过掺镱光纤和两级 Nd:YVO₄ 固态放大器,在 1064 nm 处得到平均功率为 46 W 的基频光,经 LBO 晶体和 CLBO 晶体获得平均功率为 14 W 的 266 nm DUV 光,其重复频率为 200 kHz,基频光到 DUV 光的光光转换效率高达 31%,整个装置如图 8 所示。该系统还通过了 5000 h 的稳定性测试,在测试过程中没有观察到输出功率的大幅下降。如果将基频光更加紧密地聚焦于 LBO 晶体,SHG 转换效率将从现在的 56% 提高到 75% 以上,然而过高的峰值功率密度会对晶体造成损伤,不利于大功率 DUV 激光器的长时间运行。该系统证明,高峰值功率皮秒脉冲和大孔径 CLBO 晶体的组合非常适合 DUV 激光器的长期运行。

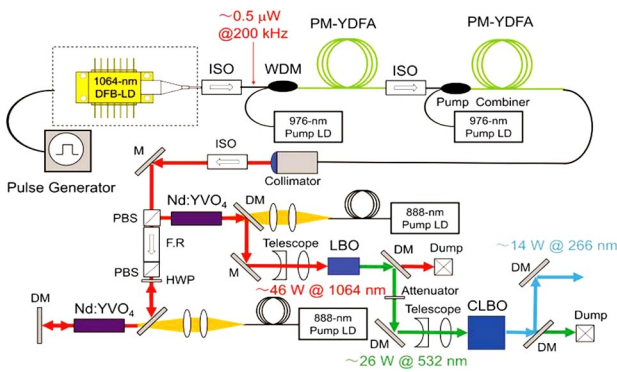


图 8 14 W 266 nm DUV 激光器示意图^[94]

Fig. 8 Schematic of 14 W 266 nm DUV laser^[94]

日本 Spectronix 公司还研发出平均功率高达 50.1 W 的 266 nm DUV 激光器,并通过了连续运行超过 5000 h 的稳定性测试^[92]。该激光器采用主振荡功率放大器(MOPA)结构,种子源为分布式反馈(DFB)激光器,最大输出功率为 260 W,脉

冲宽度为 15 ps,重复频率为 1 MHz,峰值功率为 16.7 MW。SHG 采用 LBO 晶体,FHG 采用 CLBO 晶体,当输入基频光的平均功率为 250 W 时,输出的 266 nm DUV 光平均功率为 50.1 W,NIR 光到 DUV 光的光光转换效率为 20%。在 266 nm 波长处,这是目前平均功率最高的皮秒 DUV 激光器,这一结果于 2019 年被刊登在日本 *Optical Alliance* 杂志。

在 1 μm 波段重复频率为 kHz 量级的皮秒激光光源中,目前峰值功率最高的是 2020 年新加坡制造技术研究院精密测量小组^[93]报道的 258 nm 激光器。整个装置如图 9 所示,泵浦源为 Yb:YAG 啁啾脉冲放大(CPA)系统,该系统可产生重复频率为 10 kHz、平均功率为 270 W、能量为 27 mJ、脉冲宽度为 1.2 ps 的 1030 nm 基频光。基频光峰值功率较高,从而需要利用望远镜系统将其扩束至更大的光斑尺寸以避免晶体损坏。基频光通过厚度为 5 mm、双面镀 1030 nm 和 515 nm 增透膜的 LBO 晶体,匹配方式为温度相位匹配。515 nm 的二次谐波进入 0.4 mm 厚的 I 类相位匹配的 BBO 晶体,从而获得峰值功率高达 3 GW、平均功率为 20 W、能量为 2 mJ、重复频率为 10 kHz 的 258 nm 全固态 DUV 激光器。飞秒 DUV 脉冲激光器目前的研究较少,将代表性的成果汇总至表 5^[95-98]。

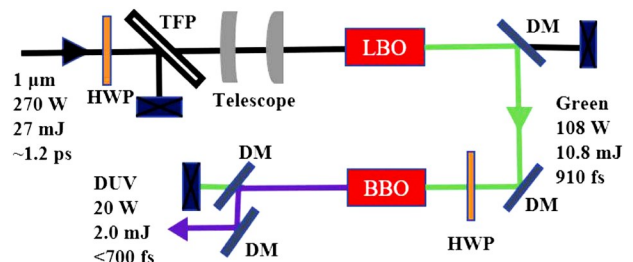


图 9 20 W 258 nm DUV 激光器示意图^[93]

Fig. 9 Schematic diagram of 20 W 258 nm DUV laser^[93]

表 5 258 nm 和 266 nm 飞秒 DUV 激光器研究进展^[95-98]

Table 5 Research progress of 258 nm and 266 nm femtosecond DUV lasers^[95-98]

Year	Fundamental wavelength /nm	Fundamental power /W	Output wavelength /nm	Output power	Pulse width /fs	Repetition rate	Ref. No.
2010	1030	11.5	259	1 W	262	100 MHz	[95]
2017	1030	40	258	4.6 W	150	796 kHz	[96]
2019	1064	4.8	266	616 mW	260	78 MHz	[97]
2020	1030	10.4	258	523 mW	500	11.48 GHz	[98]

随着基频光的重复频率迈入 GHz 时代,倍频脉冲激光的重复频率也在不断提升,当前已有 GHz DUV 脉冲激光出现,脉冲宽度也缩短到飞秒量级。2020 年法国波尔多大学 Ye 等^[98]在脉冲串的模式下

利用电光频率梳,在 258 nm 处得到重复频率高达 11.48 GHz 的 DUV 激光。装置如图 10 所示,基频光采用平均功率 10 W,波长在 1030 nm 的飞秒脉冲激光,利用电光频率梳将重复频率提升至 11.48 GHz,

这种极高的重复频率会对脉冲峰值功率有所限制, 导致非线性频率变换效率极低, 从 1030 nm 的基频光到 258 nm 的四次谐波转换效率不到 0.5%。为解决这一问题, 该实验中的基频光采用脉冲串的模式工作, 这样不仅可以调谐脉冲串包络中的子脉冲数量以及脉冲串的时间间隔, 还能保证脉冲的峰值功率不被降低。平均功率为 10.4 W 的基频光通过 LBO 晶体得到 3.7 W 的二次谐波, 而后通过厚度为 1 mm 和 0.2 mm 的 BBO 晶体, 分别得到平均功率

为 523 mW 和 294 mW 的四次谐波, 对应的基频光到 DUV 的光光转换效率分别为 5% 和 2.9%。虽然 GHz 脉冲串的波长转换效率远低于 kHz 和 MHz 重复频率的激光器, 但与连续 GHz 脉冲 0.5% 的转换效率相比, 脉冲串模式显著提高了 GHz 脉冲激光的波长转换效率。这是目前飞秒量级 258 nm 波长处唯一一个重复频率大于 1 GHz 的飞秒脉冲激光器, 它的出现代表着 DUV 激光 GHz 时代的到来。

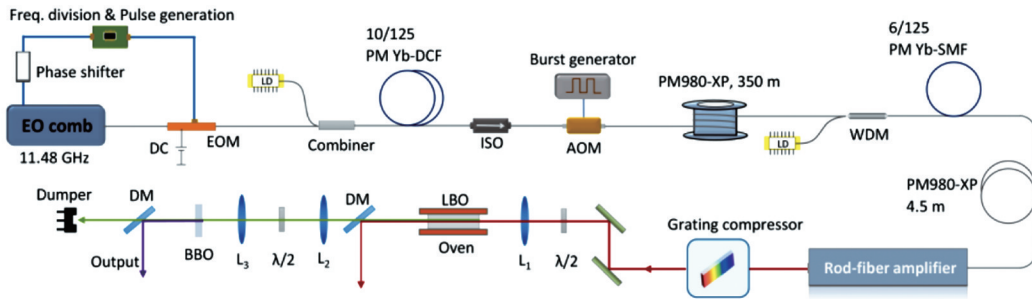


图 10 GHz 258 nm DUV 激光器示意图^[98]

Fig. 10 Schematic diagram of GHz 258 nm DUV laser^[98]

将表 3、表 4 和表 5 中所有的研究成果按照“重复频率-能量”和“重复频率-输出功率”的关系分别绘制在图 11 和图 12 中。从图 11 中可以看出, 采用 CLBO 晶体作为 FHG 材料的激光器, 其平均输出功率远高于采用 BBO 晶体作为 FHG 材料的激光器, 因此

CLBO 是目前最有希望获得百瓦输出功率的非线性晶体。由图 12 可知, FHG DUV 激光器的重复频率大多在 kHz~MHz 范围内, 且平均功率普遍较高, 而 GHz 重复频率的基频光波长转换效率低, 相应的 GHz 重复频率 DUV 激光平均功率较小, 目前在 mW 量级。

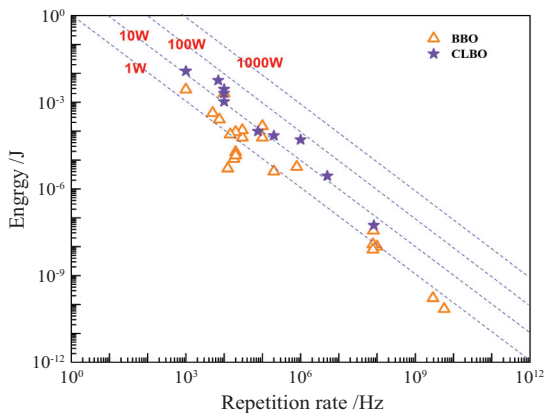


图 11 258 nm 和 266 nm 处 DUV 激光器研究现状 (重复频率-能量)

Fig. 11 Current status of DUV lasers at 258 nm and 266 nm (repetition rate-energy)

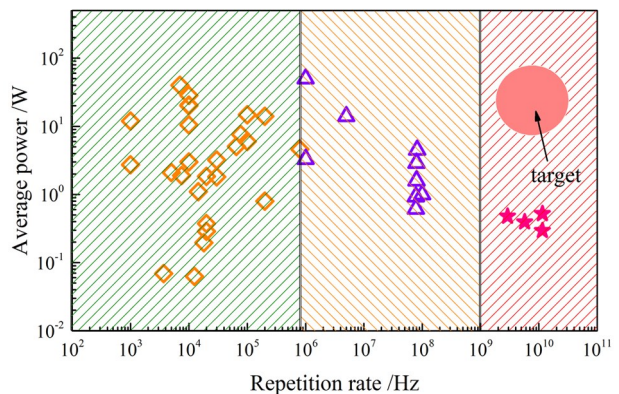


图 12 258 nm 和 266 nm 处 DUV 激光器研究现状 (重复频率-平均功率)

Fig. 12 Current status of DUV lasers at 258 nm and 266 nm (repetition rate-average power)

3.2 五倍频 (213 nm 和 206 nm) 深紫外激光器研究进展

波长为 1 μm 的 NIR 脉冲激光通过 FiHG 获得 DUV 光, 一般有“1+4”和“2+3”两种方式。“1+4”的原理如图 13 所示, 频率为 ω 的基频光通过 FHG 得到频率为 4ω 的四次谐波, 而后残余基频光与四

次谐波在晶体中和频得到频率为 5ω 的五次谐波; “2+3”原理如图 14 所示, 频率为 ω 的基频光通过 SHG, 部分红外光转换为二次谐波 2ω, 剩余基频光与二次谐波在第二块晶体中通过和频得到三倍频 (THG) 激光 3ω, 最终二次谐波和三次谐波和频得到五次谐波 5ω。

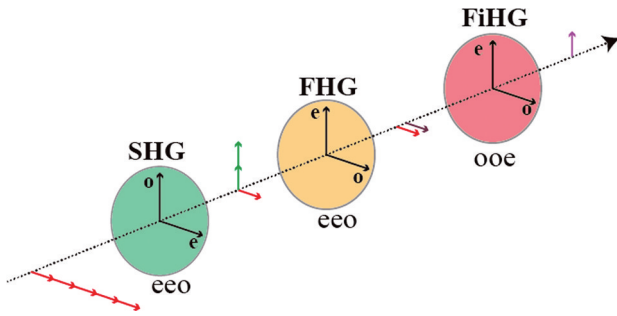


图 13 FiHG “1+4”原理图。o 光为寻常光, e 光为非寻常光

Fig. 13 Schematic diagram for principle of FiHG “1+4”. o light is ordinary light, e light is extraordinary light

目前,常用于 FiHG 非线性晶体有 BBO、CLBO、 $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ (ADP) 和 KH_2PO_4 (KDP)。其中,ADP 和 KDP 晶体需冷却至低温才能达到相位匹配条件,室温条件下实现 FiHG 一般采用 BBO 和 CLBO 晶体。CLBO 晶体接受角大,频率转换效率高,但只能通过“1+4”的方案实现五次谐波的输出,整个系统的性能受到 266 nm 和 213 nm 两个 DUV 变频过程限制,稳定性较差,且 CLBO 晶体具有高度吸湿性,很容易潮解。BBO 晶体可以采用“2+3”

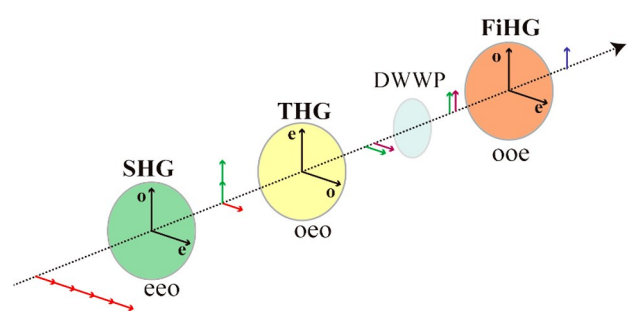


图 14 FiHG “2+3”原理图。o 光为寻常光, e 光为非寻常光, DWWP 为双色波片

Fig. 14 Schematic diagram for principle of FiHG “2+3”. o light is ordinary light, e light is extraordinary light and DWWP is dual wavelength wave plate

方案,通过 532 nm 和 355 nm 和频得到 213 nm 激光,目前 532 nm 和 355 nm 的和频已经足够成熟,可以支持高光束质量的 213 nm 激光器产生,况且相比于 CLBO 晶体, BBO 晶体成本较低。然而, BBO 晶体 FiHG 时有双光子吸收 (TPA) 的现象产生,会影响光束质量和转换效率的提升。

近年来国内外机构在这方面开展的研究非常多,为便于比较,已将部分代表性实验成果总结在表 6 中,并将其按照“重复频率-能量”和“重复频率-

表 6 206 nm 和 213 nm DUV 激光器研究进展^[63-64, 83, 88, 91, 99-117]

Table 6 Research progress of 206 nm and 213 nm DUV lasers^[63-64, 83, 88, 91, 99-117]

Year	Fundamental wavelength /nm	Fundamental power /W	Output wavelength /nm	Output power	Pulse width	Repetition rate	Ref. No.
1979	1064	2.5	213	2 mW	80 ns	4 kHz	[99]
1995	1064	6	213	400 mW	37 ns	7 kHz	[100]
1995	1064	4	213	31 mW	20 ns	20 kHz	[101]
1996	1064	10	213	560 mW	1.5 ns	200 Hz	[102]
1996	1064	22	213	2.3 W	7 ns	10 Hz	[103]
1997	1064	47	213	4 W	3 ns	100 Hz	[104]
1997	1064	6.4	213	0.5 W	17.9 ns	7 kHz	[105]
1998	1064	2.13	213	100 mW	/	1 kHz	[106]
1999	1064	4	213	75 mW	7 ns	10 Hz	[107]
1999	1064	1	213	115mW	/	5 Hz	[108]
1999	1064	4	213	280 mW	1.8 ns	20 Hz	[108]
2000	1064	27.4	213	1.15 W	7 ps	82 MHz	[83]
2002	1064	7	213	540 mW	/	5 kHz	[63]
2002	1064	0.32	213	18 mW	/	3.7 kHz	[64]
2003	1064	7	213	2 W	/	5 kHz	[109]
2003	1047	15	205	250 mW	/	100 MHz	[110]
2005	1064	7	213	0.7 W	7 ns	20 Hz	[111]
2007	1064	395	213	10.2 W	/	10 kHz	[112]
2015	1064	/	213	100 mW	15 ns	30 kHz	[113]
2016	1030	60	206	0.8 W	4 ps	100 kHz	[88]
2019	1064	24	213	0.5 W	40 ps	120 MHz	[114]
2019	1030	80	206	1 W	1.5 ps	77 kHz	[91]
2020	1030	65	206	2.5 W	1.6 ps	100 kHz	[115]
2020	1064	30	213	1.37 W	17 ps	1 MHz	[116]
2020	1064	10.5	213	61 mW	690 ps	5 MHz	[117]

平均功率”的关系,分别绘制于图 15 和图 16 中。从图中可知,采用 300 W 大功率基模激光器作为基频光的情况下,FiHG DUV 激光器的平均功率可达到 10 W,但重复频率较低,目前高功率 FiHG DUV 激光器的重复频率大都在 kHz 量级,而 MHz 重复频率的最高平均功率 1.37 W,远低于 kHz 重复频率的激光器。而对于 FiHG 的 GHz DUV 激光器,国内外对此的研究有所欠缺,这一领域目前处于空白。对于重复频率在 kHz 量级的 FiHG 激光器,台湾交通大学 Chang 等^[109]在 2003 年提出一种五次谐波产生模型,他们利用 LBO 晶体和两块 CLBO 晶体,分别用于第二、四、五次谐波的产生,模拟出的最佳结果显示,平均功率为 7 W 的基频光通过非线性频率变换,得到重复频率为 5 kHz、平均功率为 2 W 的 213 nm 五次谐波,基波到五次谐波的光光转换效率高达 30%。然而在实验过程中发现,长时间工作时

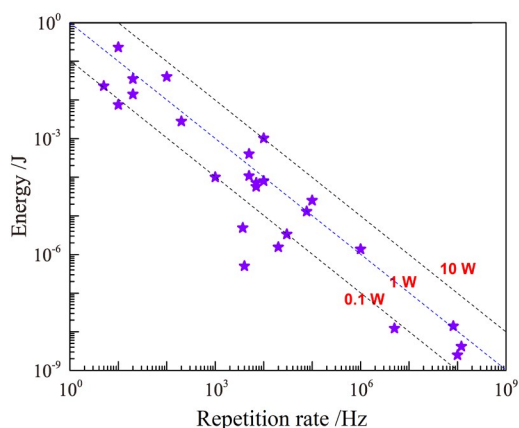


图 15 206 nm 和 213 nm DUV 激光器研究现状 (重复频率-能量)

Fig. 15 Current status of DUV lasers at 206 nm and 213 nm (repetition rate-energy)

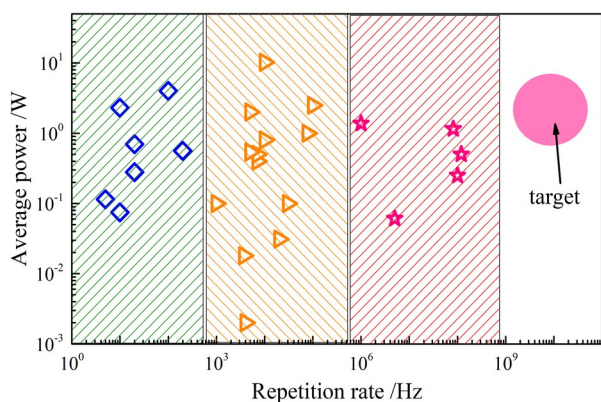


图 16 206 nm 和 213 nm DUV 激光器研究现状 (重复频率-平均功率)

Fig. 16 Current status of DUV lasers at 206 nm and 213 nm (repetition rate-average power)

DUV 光会对 CLBO 晶体造成损伤甚至整体的光学降解,同时 CLBO 晶体成本高昂、吸湿性高、容易潮解,这些因素都会导致非线性效率降低,目前在实验中,基波 FiHG 的转换效率远低于该模拟结果。

2019 年,捷克 HiLASE 激光中心 Turcicova 等^[91]报道了利用 CLBO 晶体通过“1+4”的方式产生 1 W 的 206 nm DUV 激光器。基频光由平均功率为 80 W、重复频率为 77 kHz、波长为 1030 nm 的 Yb:YAG 薄片激光器提供,通过 LBO 晶体(相位匹配角 $\theta=90^\circ$ 、 $\varphi=12.8^\circ$,长度为 10 mm,非临界相位匹配)实现 1030 nm 到 515 nm 的转换。而后这束光通过二向色镜将 1030 nm 的基波与 515 nm 的二次谐波分开,二次谐波进入 CLBO 晶体(I 类相位匹配, $\theta=66.2^\circ$ 、 $\varphi=45^\circ$, $6\text{ mm}\times 6\text{ mm}\times 6\text{ mm}$)输出平均功率 7.6 W,波长 257.5 nm 的四次谐波。残余的基波则经过一个延迟装置,与四次谐波一起耦合进 CLBO 晶体(I 类相位匹配, $\theta=75.4^\circ$ 、 $\varphi=45^\circ$, $12\text{ mm}\times 12\text{ mm}\times 4\text{ mm}$),最终得到 1 W 的 206 nm DUV 光。

2020 年,瑞士联邦工业大学 Willenberg 等^[115]在 206 nm 波长处实现了高达 2.5 W 的输出功率,装置如图 17 所示,基频光为 Yb:YAG 放大器提供的重复频率为 100 kHz、平均功率为 65 W 的 1030 nm NIR 光,通过 LBO 晶体和 BBO 晶体得到 5.1 W 的 257.5 nm 四次谐波,和频则在 5 mm 长的 BBO 晶体中进行,最终获得平均功率高达 2.5 W 的 206 nm DUV 光。该激光器的输出特性如图 18 所示,可见五次谐波的脉冲宽度为 2 ps,并且相位匹配角需要精准控制,否则将严重影响输出功率。这是目前重复频率为 100 kHz 的皮秒脉冲在 206 nm 波长处所能得到的最高输出功率。

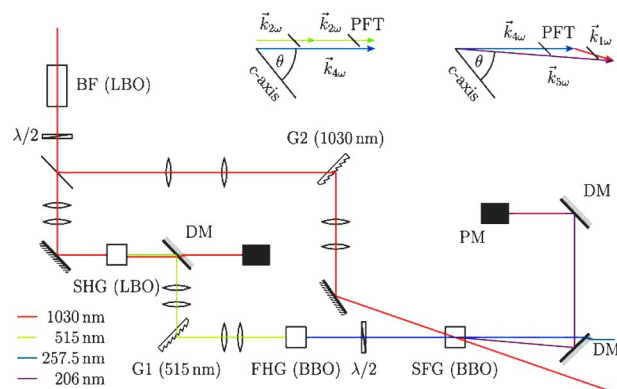


图 17 2.5 W 206 nm DUV 激光器示意图^[115]

Fig. 17 Schematic diagram of 2.5 W 206 nm DUV laser^[115]

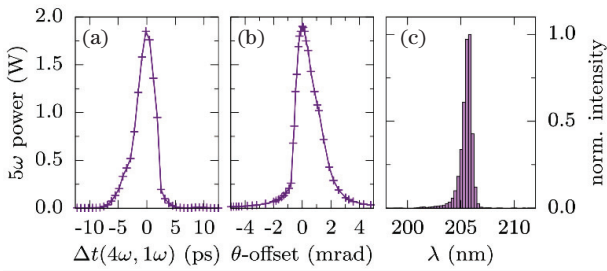


图 18 平均功率为 2 W 时, 2.5 W 206 nm DUV 激光器和频的输出特性^[115]。(a) 4 ω 和 1 ω 光束的互相关信号; (b) 输出功率与晶体角度 θ -offset 的关系; (c) 输出光的频谱

Fig. 18 Characterization of 2.5 W 206 nm DUV laser sum-frequency generation output at 2 W average power^[115]. (a) Cross-correlation signal of 4 ω and 1 ω beams; (b) output power versus crystal angle θ -offset; (c) spectrum of output laser

对于 MHz 重复频率的 FiHG 激光光源, 曾经最具代表性的结果是德国凯撒斯劳滕大学 Köhler 等^[83]于 2000 年报道的结果, 他们在 213 nm 处获得重复频率高达 82 MHz 的皮秒 DUV 脉冲, 5.6 W 的 532 nm 二次谐波与 4 W 的 355 nm 三次谐波于 8 mm 长的

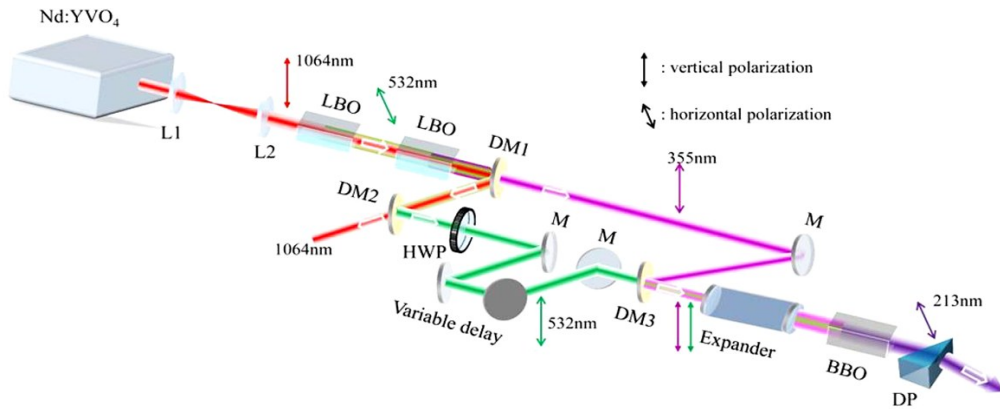


图 19 1.37 W 213 nm DUV 激光器示意图^[116]

Fig. 19 Schematic diagram of 1.37 W 213 nm DUV laser^[116]

目前, 在 200 nm 左右的波段, GHz 重复频率的飞秒激光器仅有 2019 年日本东京大学吉冈 (Yoshioka)^[118]团队的报道, 他们在 208.8 nm 处获得重复频率为 1.1 GHz 的 DUV 激光, 实验装置如图 20 所示。与参考文献[98]中由 GHz 基频光通过 FiHG 获得 GHz 五次谐波的结果不同, 该实验采用腔外滤波法, 基频光重复频率较低, 在 DUV 光的输出端通过 F-P 腔将重复频率从 74 MHz 提高到 1.1 GHz。波长为 835.5 nm、平均功率为 3 W、脉冲宽度为 10 ps、重复频率为 74 MHz 的振荡器作为基频光, 通过 BiBO 晶体进行 SHG, BBO 晶体进行 FHG, 在 208.8 nm 处得到平均功率为 1.8 mW 的

BBO 晶体中和频, 得到平均功率高达 1.15 W 的 213 nm 五次谐波。天津大学 Chu 等^[116]在 2020 年刷新了这一记录, 成功在重复频率 1 MHz 处得到平均功率为 1.37 W 的 213 nm 皮秒 DUV 脉冲, 这一结果成为目前 213 nm 波长处全固态皮秒激光系统所能产生的最高平均功率。实验装置如图 19 所示, 基频光的最大平均功率为 50 W, 经过两块 LBO 晶体分别实现 SHG 和 THG。扩束器可降低 532 nm 和 355 nm 的峰值功率密度, 避免 BBO 晶体的损坏, 扩展后的 532 nm 和 355 nm 光束直径分别为 2.7 mm 和 2.0 mm。当基频光平均功率为 30 W 时, 在 213 nm 波长处获得重复频率为 1 MHz、平均功率为 1.37 W 的输出。当以 800 mW 的平均输出功率对该激光器进行 100 h 的连续运行测试时, 未观察到 BBO 晶体表面或内部有明显损坏, 这是 213 nm 皮秒 DUV 脉冲激光器在 800 mW 级别的输出功率处可达到的最长寿命, 这一结果说明通过降低 532 nm、355 nm 和 213 nm 激光的峰值功率, 可有效缓解由 BBO 晶体内部 TPA 现象引起的晶体损伤及整体降解。

DUV 光, 此时重复频率为 74 MHz。F-P 腔由两个曲率半径为 1000 mm 的平凹镜组成, 通过压电陶瓷材料 (PZT) 调整腔长, 使得输出光重复频率提高 15 倍达到 1.1 GHz。当 F-P 腔的入射平均功率为 1.8 mW 时, 测得输出 1.1 GHz 脉冲的平均功率为 0.035 mW, 重复频率倍增的净效率仅为 1.9%。这种方式的优点是容易将重复频率提高至 GHz, 但 F-P 腔反射率相对较低, 会在时域以 74 MHz 的重复频率进行强度调制, 解决这一问题需要精细度更高的 F-P 腔。目前还没有通过 GHz 重复频率基频光获得 GHz 重复频率五次谐波的报道, 但相信未来这一领域的空白将会被填补。

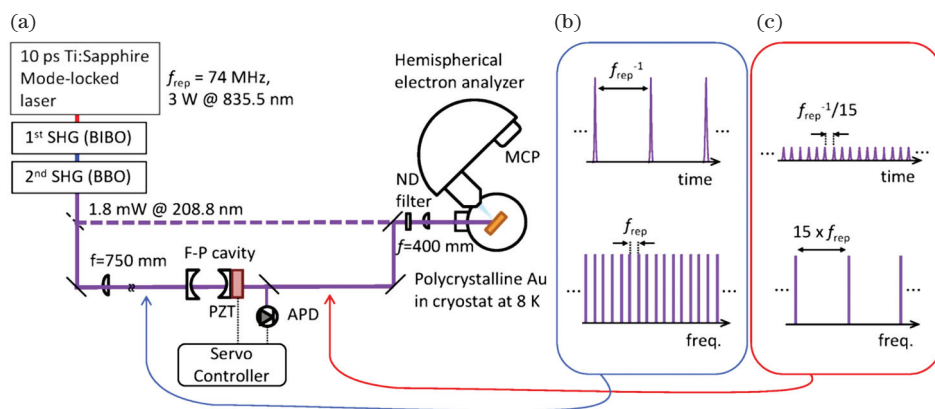


图 20 1.1 GHz 208.8 nm DUV 激光器示意图^[118]

Fig. 20 Schematic diagram of 1.1 GHz 208.8 nm DUV laser^[118]

3.3 193 nm 深紫外激光器研究进展

随着半导体计量学^[119]、DUV 激光光刻^[120]和微纳精细激光加工等 DUV 激光加工工业的兴起,以及超高分辨率光电子能谱仪^[121]、光电子发射显微镜等现代化仪器的出现,发展高光束质量、高平均功率、窄线宽的 DUV 激光光源已成为该领域的研究热点。193 nm 的 DUV 激光可通过氟化氩(ArF)准分子激光器和固体激光器两种途径产生。ArF 准分子激光器目前较为成熟,是唯一能直接在 193 nm 输出平均功率超过 100 W 的 DUV 激光器^[122],但光束质量差、线宽较宽、单色性不好。同时,由于激光器的体积庞大、需要气瓶等辅助设备、ArF 气体有毒并需定时更换等缺陷,准分子激光器的应用进一步受到限制^[123]。与准分子激光器相比,通过非线性频率变换得到的全固态 DUV 激光光源具有光束质量好、重复频率高、结构紧凑、寿命长等优点,有着更加广阔的应用前景。

波长为 774 nm 的钛宝石激光器通过 KBBF 晶体 FHG,可直接获得 193 nm 的 DUV 激光,目前这

一方式的最高输出功率可达 1.05 W^[124]。然而,由于钛宝石激光器的泵浦光源是绿色激光,成本较高且 KBBF 晶体至今没有实现商业化,整个系统无法应用于工业生产之中。除了直接倍频,利用 NIR 激光和 DUV 激光在非线性晶体中和频,也可获得 193 nm 的 DUV 激光,常用的和频晶体有 LBO、BBO 和 CLBO 晶体。其中,BBO 晶体对 193 nm 的 DUV 激光有光吸收效应,这会带来严重的晶体热效应,引发晶体的相位失配,从而影响波长转换效率和激光器的稳定性。CLBO 晶体接受角大、频率转换效率高,是最有希望获得大功率的 193 nm DUV 激光输出的晶体,不足之处是晶体昂贵且易潮解,使用时需密封,操作不便。

国内外对该波段 DUV 激光开展的研究非常多。为便于比较,将近年来的成果汇总于表 7 中,可以看出,193 nm 这一波段激光的重复频率大多在 kHz 量级,若采用更高重复频率的基频光,193 nm 激光的重复频率也将被提升至 GHz。

表 7 193 nm DUV 激光器研究进展^[66, 125-132]

Table 7 Research progress of 193 nm DUV lasers^[66, 125-132]

Year	Pump wavelength (NIR) /nm	Pump wavelength (DUV) /nm	Output power	Pulse width	Repetition rate	Ref. No.
1994	774	258	0.8 mW	170 fs	1 kHz	[125]
2003	1547	221	140 mW	1 ns	200 kHz	[66]
2003	2074	213	3 mW	3.5 ns	4 Hz	[126]
2003	1064	235.8	200 mW	/	10 kHz	[127]
2007	708.6	266	35 mW	15 ns	5 kHz	[128]
2011	1107	234.3	11.6 mW	/	CW	[129]
2014	1342	224	240 mW	12.2 ns	10 kHz	[130]
2015	1553	221	310 mW	10 ns	6 kHz	[131]
2017	1553	221	1.02 W	3 ns	10 kHz	[132]

2003 年,日本尼康公司川井(Kawai)等^[66]报道了在 CLBO 晶体中,通过 221 nm 和 1547 nm 和频

在 193 nm 处产生 140 mW 的平均功率,脉冲宽度为 1 ns 的激光。同年,日本千岁科学技术大学植村

(Umemura) 等^[127] 通过 235.8 nm 的 DUV 光和 1064 nm 的 NIR 光, 在 KABO 晶体中和频获得输出功率为 200 mW 的 193 nm DUV 光。2014 年, 德国凯撒斯劳滕光电中心 Koch 等^[130] 报道了他们在 CLBO 晶体中利用 1342 nm 和 224 nm 两束光和频, 在 191.7 nm 处得到的结果, 其输出功率为 240 mW, 从 224 nm 到 191.7 nm 的光光转换效率高达 49%。

2015 年, 日本东京大学物性研究所玄洪文等^[131] 通过 1030 nm FHG 获得 258 nm 的 DUV 激光, 与掺铒光纤激光器发出的 1553 nm NIR 光于 CLBO 晶体中和频, 在 193 nm 处获得 310 mW 的平均功率。两年后, 他们又在这一波段获得高达 1.02 W 的平均功率, 到目前为止, 这是和频方式下全固态 193 nm DUV 激光所能获得的最高平均功率^[132]。该装置如图 21 所示, Yb:YAG 激光器在 258 nm 处产生的 10 W 四次谐波, 与 1553 nm 的 NIR 激光在 CLBO 晶体中进行第一阶段的和频, 获得 2.15 W 的 221 nm 相干光, 该 DUV 相干光与残余 1553 nm 激光在之后的 CLBO 晶体中进行第二阶段的和频, 最终获得平均功率为 1.02 W、重复频率为 10 kHz 的 193 nm DUV 激光。

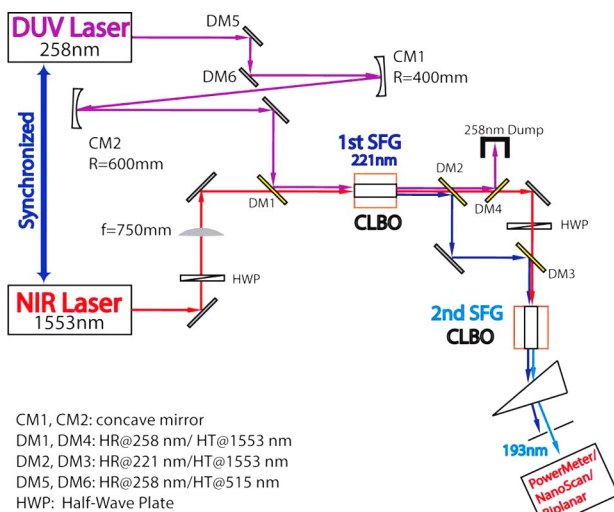


图 21 1 W 193 nm DUV 激光器示意图^[129]

Fig. 21 Schematic diagram of 1 W 193 nm DUV laser^[129]

4 总结与展望

由于 kHz 和 MHz 重复频率的 NIR 脉冲激光较为成熟, 其峰值功率高、波长转换效率高、容易获得大功率 DUV 激光, 因此当前工业领域的大功率紫外激光器重复频率通常在 kHz 和 MHz。多级放大系统的出现使得 GHz 飞秒脉冲的平均功率提升

至百瓦量级, 成功解决了 GHz 脉冲在工业加工方面的难题, 再加上非线性频率变换技术的不断提升, 让 DUV 激光的重复频率也迈入 GHz 的关口。虽然 DUV 激光技术工业化和产品化还面临一些问题, 例如晶体镀膜容易损坏、DUV 激光的波长转换效率过低、大功率 DUV 激光器长期运行不稳定等, 但相信这些问题均将在实践中逐步被解决。

对现有的报道分析可知, 大功率 355 nm 紫外激光器的平均功率已做到数百瓦, 且市场成熟度较高。虽然波长在 300 nm 以下的 DUV 激光器商业化程度较低, 但目前实验室开发的 266 nm 激光器可做到 50.1 W 的输出功率, 即将迈入百瓦量级并且通过了连续运行超过 5000 h 的稳定性测试, 未来这一领域可能是市场争夺的高地。另外, “脉冲串”模式的出现扭转了 GHz 基频光峰值功率低、非线性频率变换难以进行的局面。随着频率变换技术和功率放大技术的进一步成熟, 也许未来的 5~10 年内会出现 kW 级的 DUV 激光器, 这一切必将使得基于紫外激光和 DUV 激光的二次光源得到突破性进展。

参 考 文 献

- [1] 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.
- [2] Zou B Y, Dai J N, Hong W Y. Study on supercontinuum generation of femtosecond double pulses bound-state in optical fiber [J]. Chinese Journal of Lasers, 2020, 47(7): 0706003.
邹宝英, 戴佳男, 洪伟毅. 光纤中飞秒双脉冲束缚态产生超连续谱的研究[J]. 中国激光, 2020, 47(7): 0706003.
- [3] Zhu X N, Bao W X. Fundamentals of ultrashort pulse laser and its applications[J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(12): 1200001.
朱晓农, 包文霞. 超短脉冲激光及其相关应用的一些基本知识[J]. 中国激光, 2019, 46(12): 1200001.
- [4] Cui Z Q, Guan Y C. Review of numerical models of ultrafast laser processing[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2020, 57(11): 111408.
崔智铨, 管迎春. 超快激光加工过程主要数值模型研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2020, 57(11): 111408.

- [5] Li J J, Liu Y, Qu S L. Research progress on optical fiber functional devices fabricated by femtosecond laser micro-nano processing[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2020, 57(11): 111402.
李金健, 刘一, 曲士良. 飞秒激光微纳加工光纤功能器件研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2020, 57(11): 111402.
- [6] Wei C, Ma Y P, Han Y, et al. Femtosecond laser processing of ultrahard materials[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2019, 56(19): 190003.
魏超, 马玉平, 韩源, 等. 飞秒激光加工超硬材料的研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2019, 56(19): 190003.
- [7] Kerse C, Kalaycioglu H, Elahi P, et al. Ablation-cooled material removal with ultrafast bursts of pulses[J]. *Nature*, 2016, 537(7618): 84-88.
- [8] Ji N, Magee J C, Betzig E. High-speed, low-photodamage nonlinear imaging using passive pulse splitters[J]. *Nature Methods*, 2008, 5(2): 197-202.
- [9] Coddington I, Newbury N, Swann W. Dual-comb spectroscopy[J]. *Optica*, 2016, 3(4): 414-426.
- [10] Lee J, Kim Y J, Lee K, et al. Time-of-flight measurement with femtosecond light pulses[J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(10): 716-720.
- [11] Newman Z L, Maurice V, Drake T, et al. Architecture for the photonic integration of an optical atomic clock[J]. *Optica*, 2019, 6(5): 680-685.
- [12] Kliebisch O, Heinecke D C, Dekorsy T. Ultrafast time-domain spectroscopy system using 10 GHz asynchronous optical sampling with 100 kHz scan rate[J]. *Optics Express*, 2016, 24(26): 29930-29940.
- [13] Wang F. Study on generation and application of high energy DUV lasers[D]. Mianyang: China Academy of Engineering Physics, 2020.
王芳. 高能深紫外激光的产生及应用技术研究[D]. 绵阳: 中国工程物理研究院, 2020.
- [14] Okamoto A, Kuniyasu H, Hattori T. Detection of 30-40-nm particles on bulk-silicon and SOI wafers using deep UV laser scattering [J]. *IEEE Transactions on Semiconductor Manufacturing*, 2006, 19(4): 372-380.
- [15] Ma J Z. Angle-resolved photoemission spectroscopy study of topological materials[D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences (Institute of Physics Chinese Academy of Sciences), 2017.
马均章. 角分辨光电子能谱在拓扑材料研究中的应用[D]. 北京: 中国科学院大学(中国科学院物理研究所), 2017.
- [16] Zheng L, Wang H B, Tian W L, et al. LD-pumped high-repetition-rate all-solid-state femtosecond lasers [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2020, 49(12): 20201069.
郑立, 汪会波, 田文龙, 等. LD泵浦的高重复频率全固态飞秒激光器[J]. *红外与激光工程*, 2020, 49(12): 20201069.
- [17] Tang D Y, Zhao L M, Zhao B, et al. Mechanism of multisoliton formation and soliton energy quantization in passively mode-locked fiber lasers [J]. *Physical Review A*, 2005, 72(4): 043816.
- [18] Becker M F, Kuizenga D J, Siegman A E. Harmonic mode locking of the Nd:YAG laser[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1972, 8(8): 687-693.
- [19] Zhou S A, Ouzounov D G, Wise F W. Passive harmonic mode-locking of a soliton Yb fiber laser at repetition rates to 1.5 GHz [J]. *Optics Letters*, 2006, 31(8): 1041-1043.
- [20] Sobon G, Krzempek K, Kaczmarek P, et al. 10 GHz passive harmonic mode-locking in Er-Yb double-clad fiber laser [J]. *Optics Communications*, 2011, 284(18): 4203-4206.
- [21] Kang M S, Joly N Y, Russell P St J. Passive mode-locking of fiber ring laser at the 337th harmonic using gigahertz acoustic core resonances[J]. *Optics Letters*, 2013, 38(4): 561-563.
- [22] Lecaplain C, Grelu P. Multi-gigahertz repetition-rate-selectable passive harmonic mode locking of a fiber laser [J]. *Optics Express*, 2013, 21(9): 10897-10902.
- [23] Thapa R, Nguyen D, Zong J, et al. All-fiber fundamentally mode-locked 12 GHz laser oscillator based on an Er/Yb-doped phosphate glass fiber [J]. *Optics Letters*, 2014, 39(6): 1418-1421.
- [24] Yang C. Investigation of high repetition rate ytterbium-doped dual repetition-rate mode-locked laser system [D]. Shanghai: East China Normal University, 2018.
杨超. 高重复频率掺镱双重频锁模激光器系统的研究[D]. 上海: 华东师范大学, 2018.
- [25] Kimura S, Tani S, Kobayashi Y. Kerr-lens mode locking above a 20 GHz repetition rate [J]. *Optica*, 2019, 6(5): 532-533.
- [26] Gherman T, Romanini D, Sagnes I, et al. Cavity-enhanced absorption spectroscopy with a mode-locked diode-pumped vertical external-cavity surface-emitting laser [J]. *Chemical Physics Letters*, 2004, 390(1/2/3): 290-295.
- [27] Aschwanden A, Lorenser D, Unold H J, et al. 10 GHz passively mode-locked external-cavity semiconductor laser with 1.4 W average output power [J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 86(13): 131102.
- [28] Lorenser D, Maas D J H C, Unold H J, et al.

- 50-GHz passively mode-locked surface-emitting semiconductor laser with 100-mW average output power [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 2006, 42(8): 838-847.
- [29] Kerse C, Kalaycioglu H, Elahi P, et al. 3.5-GHz intra-burst repetition rate ultrafast Yb-doped fiber laser [J]. *Optics Communications*, 2016, 366: 404-409.
- [30] Bonamis G, Audouard E, Hönninger C, et al. Systematic study of laser ablation with GHz bursts of femtosecond pulses [J]. *Optics Express*, 2020, 28(19): 27702-27714.
- [31] Nakajima Y, Nishiyama A, Minoshima K. Mode-filtering technique based on all-fiber-based external cavity for fiber-based optical frequency comb [J]. *Optics Express*, 2018, 26(4): 4656-4664.
- [32] Nakajima Y, Hariki T, Nishiyama A, et al. Phase-stabilized all-fiber-based mode-filtering technique for generating a gigahertz frequency comb [J]. *Optics Express*, 2020, 28(12): 17502-17510.
- [33] Bartulevicius T, Madeikis K, Veselis L, et al. Active fiber loop for synthesizing GHz bursts of equidistant ultrashort pulses [J]. *Optics Express*, 2020, 28(9): 13059-13067.
- [34] Li C, Ma Y X, Gao X, et al. 1 GHz repetition rate femtosecond Yb: fiber laser for direct generation of carrier-envelope offset frequency [J]. *Applied Optics*, 2015, 54(28): 8350-8353.
- [35] Ma Y X, Meng F, Wang Y, et al. High contrast linking six lasers to a 1 GHz Yb: fiber laser frequency comb [J]. *Chinese Optics Letters*, 2019, 17(4): 041402.
- [36] Wang Y, Liu Y Z, Zhang Z G, et al. 97-Watt, 1.08-Gigahertz repetition rate, femtosecond Yb: fiber laser source [C] // 14th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO PR 2020), August 3-5, 2020, Sydney, Australia. Washington, D.C.: OSA, 2020: C2A_2.
- [37] Chen H W, Chang G Q, Xu S H, et al. 3 GHz, fundamentally mode-locked, femtosecond Yb-fiber laser [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(17): 3522-3524.
- [38] Cheng H H, Wang W L, Zhou Y, et al. 5 GHz fundamental repetition rate, wavelength tunable, all-fiber passively mode-locked Yb-fiber laser [J]. *Optics Express*, 2017, 25(22): 27646-27651.
- [39] Zhou Y, Lin W, Cheng H H, et al. Composite filtering effect in a SESAM mode-locked fiber laser with a 3.2 GHz fundamental repetition rate: switchable states from single soliton to pulse bunch: erratum [J]. *Optics Express*, 2018, 26(13): 17458.
- [40] Wang W L, Lin W, Cheng H H, et al. Gain-guided soliton: scaling repetition rate of passively modelocked Yb-doped fiber lasers to 12.5 GHz [J]. *Optics Express*, 2019, 27(8): 10438-10448.
- [41] Gao X B, Zhao Z G, Cong Z H, et al. Stable 5-GHz fundamental repetition rate passively SESAM mode-locked Er-doped silica fiber lasers [J]. *Optics Express*, 2021, 29(6): 9021-9029.
- [42] Liu Y, Lin W, Wang W, et al. 130 W, 1.2 GHz femtosecond all-fiber laser at 1.0 μm [C] // 2020 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), May 10-15, 2020, San Jose, CA, United States. New York: IEEE Press, 2020: 1-2.
- [43] Bonamis G, Audouard E, Hönninger C, et al. Systematic study of laser ablation with GHz bursts of femtosecond pulses [J]. *Optics Express*, 2020, 28(19): 27702-27714.
- [44] Kobayashi Y, Nomura Y, Watanabe S. 1.3-GHz, 20-W, femtosecond chirped-pulse amplifier system [C] // 2010 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), May 16-21, San Jose, California, United States. Washington, D.C.: OSA, 2010: CMN3.
- [45] Hartl I, Romann A, Fermann M E. Passively mode locked GHz femtosecond Yb-fiber laser using an intra-cavity Martinez compressor [C] // 2011 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), May 1-6, 2011, Baltimore, Maryland, USA. Washington, D.C.: OSA, 2011: CMD3.
- [46] Zhao Z, Dunham B M, Bazarov I, et al. Generation of 110 W infrared and 65 W green power from a 1.3-GHz sub-picosecond fiber amplifier [J]. *Optics Express*, 2012, 20(5): 4850-4855.
- [47] Elahi P, Akcaalan Ö, Ertek C, et al. High-power Yb-based all-fiber laser delivering 300 fs pulses for high-speed ablation-cooled material removal [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(3): 535-538.
- [48] Marion D, Lhermite J, Pontagnier L, et al. 1 to 18 GHz tunable intra-burst repetition rate high-power picosecond fiber laser for ultrafast material processing [C] // Laser Congress 2018 (ASSL), November 4-8, 2018, Boston, Massachusetts, United States. Washington, D.C.: OSA, 2018: AT5A.5.
- [49] Bonamis G, Mishchik K, Lopez J, et al. Industrial GHz femtosecond laser source for high efficiency ablation [C] // 2018 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), May 13-18, 2018, San Jose, California, USA. Washington, D.C.: OSA, 2018: AM2M.4.
- [50] Bonamis G, Sanabria J, Audouard E, et al. 20-W ultraviolet femtosecond GHz burst laser [C] // 2019 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/

- Europe-EQEC), June 23-27, 2019, Munich, Germany. New York: IEEE Press, 2019: 1.
- [51] Liu Y C, Wu J F, Wen X X, et al. >100 W GHz femtosecond burst mode all-fiber laser system at 1.0 μm [J]. Optics Express, 2020, 28(9): 13414-13422.
- [52] Zhao S Z. Nonlinear optics [M]. Jinan: Shandong University Press, 2007.
赵圣之. 非线性光学 [M]. 济南: 山东大学出版社, 2007.
- [53] Chen C T, Wu B C, Jiang A D, et al. A new-type ultraviolet SHG crystal- $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ [J]. Science in China Series B, 1985, 28(3): 235-243.
- [54] Chen C T, Wu Y C, Jiang A D, et al. New nonlinear-optical crystal: LiB_3O_5 [J]. Journal of the Optical Society of America B, 1989, 6(4): 616-621.
- [55] Mori Y, Kuroda I, Nakajima S, et al. New nonlinear optical crystal: cesium lithium borate [J]. Applied Physics Letters, 1995, 67(13): 1818-1820.
- [56] Chen C T, Lü J H, Wang G L, et al. Deep ultraviolet harmonic generation with $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ crystal [J]. Chinese Physics Letters, 2001, 18(8): 1081.
- [57] Wang X Y, Liu L J. Research progress of deep-UV nonlinear optical crystals and all-solid-state deep-UV coherent light sources [J]. Chinese Optics, 2020, 13(3): 427-441.
王晓洋, 刘丽娟. 深紫外非线性光学晶体及全固态深紫外相干光源研究进展 [J]. 中国光学, 2020, 13(3): 427-441.
- [58] Chen C T, Luo S Y, Wang X Y, et al. Deep UV nonlinear optical crystal: $\text{RbBe}_2(\text{BO}_3)_2\text{F}_2$ [J]. Journal of the Optical Society of America B, 2009, 26(8): 1519-1525.
- [59] Yue Y C, Wu Z X, Lin Z S, et al. Growth and properties of bulk Na-doped KABO crystals [J]. Solid State Sciences, 2011, 13(5): 1172-1175.
- [60] Kojima T, Konno S, Fujikawa S, et al. 20-W ultraviolet-beam generation by fourth-harmonic generation of an all-solid-state laser [J]. Optics Letters, 2000, 25(1): 58-60.
- [61] He J L, Lu X Q, Jia Y L, et al. All-solid-state $\text{Nd}:\text{YVO}_4$ UV laser at 266 nm by fourth harmonic using a BBO crystal [J]. Acta Physica Sinica, 2000, 49(10): 2106-2108.
何京良, 卢兴强, 贾玉磊, 等. BBO 四倍频全固态 $\text{Nd}:\text{YVO}_4$ 紫外激光器 [J]. 物理学报, 2000, 49(10): 2106-2108.
- [62] Konno S, Inoue Y, Kojima T, et al. Efficient high-pulse-energy green-beam generation by intracavity frequency doubling of a quasi-continuous-wave laser-diode-pumped $\text{Nd}:\text{YAG}$ laser [J]. Applied Optics, 2001, 40(24): 4341-4343.
- [63] Chang L B, Wang S C, Kung A H. Efficient compact watt-level deep-ultraviolet laser generated from a multi-kHz Q-switched diode-pumped solid-state laser system [J]. Optics Communications, 2002, 209(4/5/6): 397-401.
- [64] Kliner D A V, Teodoro F D, Koplow J P, et al. Efficient second, third, fourth, and fifth harmonic generation of a Yb-doped fiber amplifier [J]. Optics Communications, 2002, 210(3/4/5/6): 393-398.
- [65] Jia Y L. 355 nm\266 nm all-solid-state ultraviolet laser [D]. Jinan: Shandong Normal University, 2002.
贾玉磊. 355nm\266nm 全固态紫外激光器 [D]. 济南: 山东师范大学, 2002.
- [66] Kawai H, Tokuhisa A, Doi M, et al. UV light source using fiber amplifier and nonlinear wavelength conversion [C] // 2003 Conference on Lasers and Electro-Optics(CLEO), June 1-6, 2003, Baltimore, Maryland, United States. Washington, D.C.: OSA, 2003: CTuT4.
- [67] Nishioka M, Fukumoto S, Kawamura F, et al. Improvement of laser-induced damage tolerance in $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ for high-power UV laser source [C] // 2003 Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference (CLEO), June 1-6, 2003, Baltimore, Maryland, United States. Washington, D.C.: OSA, 2003: CTuF2.
- [68] Wang G L, Geng A C, Bo Y, et al. 28.4 W 266 nm ultraviolet-beam generation by fourth-harmonic generation of an all-solid-state laser [J]. Optics Communications, 2006, 259(2): 820-822.
- [69] Liu Q, Yan X P, Fu X, et al. High power all-solid-state fourth harmonic generation of 266 nm at the pulse repetition rate of 100 kHz [J]. Laser Physics Letters, 2009, 6(3): 203-206.
- [70] Xiang Z, Ge J H, Zhao Z G, et al. 1.9-W flash-lamp-pumped solid-state 266-nm ultraviolet laser [J]. Chinese Optics Letters, 2009, 7(6): 502-504.
- [71] Diening A, McLean S, Starodoumov A. High average power 258 nm generation in a nanosecond fiber MOPA system [J]. Proceedings of SPIE, 2009, 7195: 71950H.
- [72] Chen F, Wang W W, Liu J. Diode single-end-pumped AO Q-switched $\text{Nd}:\text{GdVO}_4$ 266 nm laser [J]. Laser Physics, 2010, 20(2): 454-457.
- [73] Zhuang F J, Ye N, Huang C H, et al. Multi-reflected enhancement of fourth harmonic DUV laser generation at 266 nm [J]. Optics Express, 2010, 18(24): 25339-25345.

- [74] Li B, Yao J Q, Ding X, et al. Laser diode-side-pumped high power 266 nm ultraviolet laser [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2011, 23(8): 2065-2068.
李斌, 姚建铨, 丁欣, 等. 激光二极管侧面泵浦高功率 266 nm 紫外激光器 [J]. 强激光与粒子束, 2011, 23(8): 2065-2068.
- [75] Liu Q, Yan X P, Gong M L, et al. High-power 266 nm ultraviolet generation in yttrium aluminum borate [J]. Optics Letters, 2011, 36(14): 2653-2655.
- [76] Wang L R, Wang G L, Zhang X, et al. Generation of ultraviolet radiation at 266 nm with $\text{RbBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ crystal [J]. Chinese Physics Letters, 2012, 29(6): 064203.
- [77] Zhai S Y, Wang X L, Wei Y, et al. A compact efficient deep ultraviolet laser at 266 nm [J]. Laser Physics Letters, 2013, 10(4): 045402.
- [78] Délen X, Deyra L, Benoit A, et al. Hybrid master oscillator power amplifier high-power narrow-linewidth nanosecond laser source at 257 nm [J]. Optics Letters, 2013, 38(6): 995-997.
- [79] Nikitin D G, Byalkovskiy O A, Vershinin O I, et al. Sum frequency generation of UV laser radiation at 266 nm in LBO crystal [J]. Optics Letters, 2016, 41(7): 1660-1663.
- [80] Mu X D, Steinvurzel P, Rose T S, et al. High efficiency fourth-harmonic generation from nanosecond fiber master oscillator power amplifier [J]. Proceedings of SPIE, 2016, 9731: 973108.
- [81] Goldberg L, Cole B, McIntosh C, et al. Narrow-band 1 W source at 257 nm using frequency quadrupled passively Q-switched Yb:YAG laser [J]. Optics Express, 2016, 24(15): 17397-17405.
- [82] Xuan H W, Qu C, Ito S, et al. High-power and high-conversion efficiency deep ultraviolet (DUV) laser at 258 nm generation in the $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ (CLBO) crystal with a beam quality of $M^2 < 1.5$ [J]. Optics Letters, 2017, 42(16): 3133-3136.
- [83] Köhler B, Andres T, Nebel A, et al. High-power, high-repetition-rate fourth and fifth harmonic generation of a cw mode locked Nd:YVO₄ laser [C]// Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2000), May 7-12, 2000, San Francisco, CA, USA. New York: IEEE Press, 2000: 142-143.
- [84] Granados E, Spence D J, Mildren R P. Deep ultraviolet diamond Raman laser [J]. Optics Express, 2011, 19(11): 10857-10863.
- [85] Orii Y, Takushima Y, Yamagaki M, et al. High-energy 266-nm picosecond pulse generation from a narrow spectral bandwidth gain-switched LD MOPA [C]//CLEO: QELS_Fundamental Science 2013, June 9-14, 2013, San Jose, California United States. Washington, D.C.: OSA, 2013: JTh2A.64.
- [86] Hong K H, Chang C L, Krogen P, et al. Multi-mJ, kHz picosecond deep UV source based on a frequency-quadrupled cryogenic Yb:YAG laser [J]. Proceedings of SPIE, 2015, 9513: 95130U.
- [87] Kumar S C, Casals J C, Wei J X, et al. High-power, high-repetition-rate performance characteristics of $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ for single-pass picosecond ultraviolet generation at 266 nm [J]. Optics Express, 2015, 23(21): 28091-28103.
- [88] Novák O, Turčičová H, Smrž M, et al. Picosecond green and deep ultraviolet pulses generated by a high-power 100 kHz thin-disk laser [J]. Optics Letters, 2016, 41(22): 5210-5213.
- [89] Hou Z Y, Liu L J, Fang Z, et al. High-power 266 nm laser generation with a $\text{NaSr}_3\text{Be}_3\text{B}_3\text{O}_9\text{F}_4$ crystal [J]. Optics Letters, 2018, 43(22): 5599-5602.
- [90] Li C, Xuan H W, Winkelmann L, et al. 3 GHz, 257 nm picosecond source for electron guns [C]//2018 Europhoton, September 2-7, 2018, Barcelona, Spain. Mulhouse: European Physical Society, 2018: 04177.
- [91] Turcicova H, Novak O, Roskot L, et al. New observations on DUV radiation at 257 nm and 206 nm produced by a picosecond diode pumped thin-disk laser [J]. Optics Express, 2019, 27(17): 24286-24299.
- [92] Orii Y, Kono K. World's highest output high-repetition deep-ultraviolet picosecond pulsed laser [J]. Optical Alliance, 2019, 10: 12-15.
- [93] Liu K, Li H, Qu S Z, et al. 20 W, 2 mJ, sub-ps, 258 nm all-solid-state deep-ultraviolet laser with up to 3 GW peak power [J]. Optics Express, 2020, 28(12): 18360-18367.
- [94] Kohno K, Orii Y, Sawada H, et al. High-power DUV picosecond pulse laser with a gain-switched-LD-seeded MOPA and large CLBO crystal [J]. Optics Letters, 2020, 45(8): 2351-2354.
- [95] Zhou X Y, Yoshitomi D, Kobayashi Y, et al. 1 W average-power 100 MHz repetition-rate 259 nm femtosecond deep ultraviolet pulse generation from ytterbium fiber amplifier [J]. Optics Letters, 2010, 35(10): 1713-1715.
- [96] Müller M, Klenke A, Gottschall T, et al. High-average-power femtosecond laser at 258 nm [J]. Optics Letters, 2017, 42(14): 2826-2829.
- [97] Rao A S, Chaitanya N A, Samanta G K. High-power, high repetition-rate, ultrafast fibre laser based source of DUV radiation at 266 nm [J]. OSA Continuum, 2019, 2(1): 99-106.

- [98] Ye H Y, Pontagnier L, Dixneuf C, et al. Multi-GHz repetition rate, femtosecond deep ultraviolet source in burst mode derived from an electro-optic comb[J]. *Optics Express*, 2020, 28(25): 37209-37217.
- [99] Jones M D, Massey G A. Milliwatt-level 213 nm source based on a repetitively Q-switched, CW-pumped Nd:YAG laser [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1979, 15(4): 204-206.
- [100] Wiechmann W, Liu L Y, Oka M, et al. Efficient high-repetition-rate all-solid-state fifth harmonic generation from a diode-pumped Q-switched Nd:YAG laser[C]//1995 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), May 21-26, 1995, Baltimore, Maryland, United States. Washington, D.C.: OSA, 1995: CPD19.
- [101] Petersen A B, Nighan W L. High-repetition-rate UV generation with diode-pumped Nd:YVO₄ lasers [C]//1995 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), May 21-26, 1995, Baltimore, Maryland, United States. Washington, D.C.: OSA, 1995: CWG2.
- [102] Wu R K, Myers M J, Myers J D, et al. 560 mW, fifth harmonic (213 nm), 200 Hz flashlamp pumped Nd:YAG laser system [C]//1996 OSA Trends in Optics and Photonics Series, January 31, 1996, San Francisco, California. Washington, D.C.: OSA, 1996: FC4.
- [103] Yap Y K, Inagaki M, Nakajima S, et al. High-power fourth-and fifth-harmonic generation of a Nd:YAG laser by means of a CsLiB₆O₁₀ [J]. *Optics Letters*, 1996, 21(17): 1348-1350.
- [104] Yap Y K, Mori Y, Haramura S, et al. High power all-solid-state ultraviolet laser by CLBO crystal [C]//1997 Advanced Solid State Lasers, January 27, 1997, Orlando, Florida. Washington, D.C.: OSA, 1997: US3.
- [105] Masuda H, Kikuchi H, Mori H, et al. Single frequency 0.5 W generation at 213 nm from an injection-seeded, diode-pumped, high-repetition-rate, Q-switched Nd:YAG laser [C]//1997 OSA Trends in Optics and Photonics Series, January 27, 1997, Orlando, Florida, United States. Washington, D.C.: OSA, 1997: US1.
- [106] Kung A H, Chen P J, Jr-i L, et al. Compact solid state UV laser for photochemistry and materials processing[J]. *Proceedings of SPIE*, 1998, 3272: 100-104.
- [107] Jeffries T E, Jackson S E, Longerich H P. Application of a frequency quintupled Nd:YAG source ($\lambda = 213$ nm) for laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometric analysis of minerals [J]. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 1998, 13(9): 935-940.
- [108] Kokh A E, Mishchenko V, Antsygin V D, et al. Growth and investigation of BBO crystals with improved characteristics for UV harmonic generation[J]. *Proceedings of SPIE*, 1999, 3610: 139-147.
- [109] Chang L B, Wang S C, Kung A H. Numerical analysis of fifth-harmonic conversion of low-power pulsed Nd:YAG laser with resonance of second harmonic[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2003, 42(Part 1, No. 7A): 4318-4324.
- [110] Wall K F, Smucz J S, Pati B, et al. A quasi-continuous-wave deep ultraviolet laser source [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 2003, 39(9): 1160-1169.
- [111] Wang Z L, Alameh K, Zheng R. High-efficiency stable 213-nm generation for LASIK application[J]. *Proceedings of SPIE*, 2005, 5646: 200-205.
- [112] Katsura T, Kojima T, Kurosawa M, et al. High-power, high-repetition UV beam generation with an all-solid-state laser [C] // 2007 European Conference on Lasers and Electro-Optics and the International Quantum Electronics Conference, June 17-22, 2007, Munich, Germany. New York: IEEE Press, 2007: 1.
- [113] Bykov S V, Mao M, Gares K L, et al. Compact solid-state 213 nm laser enables standoff deep ultraviolet Raman spectrometer: measurements of nitrate photochemistry [J]. *Applied Spectroscopy*, 2015, 69(8): 895-901.
- [114] Miyata K, Mohara M, Shimura K, et al. Programmable deep-UV laser platform for inspection and metrology[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(22): 5618-5621.
- [115] Willenberg B, Brunner F, Phillips C R, et al. High-power picosecond deep-UV source via group velocity matched frequency conversion[J]. *Optica*, 2020, 7(5): 485-491.
- [116] Chu Y X, Zhang X D, Chen B B, et al. Picosecond high-power 213-nm deep-ultraviolet laser generation using β -BaB₂O₄ crystal [J]. *Optics & Laser Technology*, 2021, 134: 106657.
- [117] Su X, Yao J, Wang Y N, et al. Ultra-violet picosecond fiber-solid hybrid amplification laser[J]. *Optics and Precision Engineering*, 2020, 28(10): 2122-2128.
- 苏鑫, 姚吉, 王禹凝, 等. 皮秒光纤-固体混合放大紫外激光器[J]. *光学精密工程*, 2020, 28(10): 2122-2128.

- [118] Yoshioka K, Omachi J, Sakano M, et al. Gigahertz-repetition-rate, narrowband-deep-ultraviolet light source for minimization of acquisition time in high-resolution angle-resolved photoemission spectroscopy[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2019, 90(12): 123109.
- [119] Sohn Y J, Quintanilha R, Barnes B M, et al. 193 nm angle-resolved scatter field microscope for semiconductor metrology[J]. *Proceedings of SPIE*, 2009, 7405: 74050R.
- [120] Kirner R, Vetter A, Opalevs D, et al. Mask-aligner lithography using a continuous-wave diode laser frequency-quadrupled to 193 nm [J]. *Optics Express*, 2018, 26(2): 730-743.
- [121] Wang L S, Li X, Zhang H F. Probing the electronic structure of iron clusters using photoelectron spectroscopy[J]. *Chemical Physics*, 2000, 262(1): 53-63.
- [122] Tanaka S, Arakawa M, Fuchimukai A, et al. Development of high coherence high power 193 nm laser [J]. *Proceedings of SPIE*, 2016, 9726: 972624.
- [123] Fujimoto J, Kobayashi M, Kakizaki K, et al. 193nm high power lasers for the wide bandgap material processing[J]. *Proceedings of SPIE*, 2017, 10097: 100970T.
- [124] Kanai T, Wang X Y, Adachi S, et al. Watt-level tunable deep ultraviolet light source by a KBBF prism-coupled device[J]. *Optics Express*, 2009, 17(10): 8696-8703.
- [125] Ringling J, Kittelmann O, Seifert F, et al. Femtosecond solid state light sources tunable around 193 nm [J]. *Proceedings of SPIE*, 1994, 2116: 56-65.
- [126] Horn I, Günther D, Guillon M. Evaluation and design of a solid-state 193 nm OPO-Nd:YAG laser ablation system [J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2003, 58(10): 1837-1846.
- [127] Umemura N, Ando M, Suzuki K, et al. 200-mW-average power ultraviolet generation at 0.193 microm in $K_2Al_2B_2O_7$ [J]. *Applied Optics*, 2003, 42(15): 2716-2719.
- [128] Merriam A J, Bethune D S, Hoffnagle J A, et al. A solid-state 193-nm laser with high spatial coherence for sub-40-nm interferometric immersion lithography [J]. *Proceedings of SPIE*, 2007, 6520: 65202Z.
- [129] Sakuma J, Moriizumi K, Kusunose H. True CW 193.4-nm light generation based on frequency conversion of fiber amplifiers[J]. *Optics Express*, 2011, 19(16): 15020-15025.
- [130] Koch P, Bartschke J, L'huillier J A. All solid-state 191.7 nm deep-UV light source by seventh harmonic generation of an 888 nm pumped, Q-switched 1342 nm Nd:YVO₄ laser with excellent beam quality [J]. *Optics Express*, 2014, 22(11): 13648-13658.
- [131] Xuan H W, Zhao Z G, Igarashi H, et al. 300-mW narrow-linewidth deep-ultraviolet light generation at 193 nm by frequency mixing between Yb-hybrid and Er-fiber lasers [J]. *Optics Express*, 2015, 23(8): 10564-10572.
- [132] Xuan H W, Qu C, Zhao Z G, et al. 1 W solid-state 193 nm coherent light by sum-frequency generation [J]. *Optics Express*, 2017, 25(23): 29172-29179.

Recent Trend of High Repetition Rate Ultrashort Laser Pulse Generation and Frequency Conversion

Zheng Jiaqi¹, Cong Zhenhua^{1,2}, Liu Zhaojun^{1,2}, Wang Shang², Zhao Zhigang^{1,2,3*}

¹ School of Information Science and Engineering, Shandong University, Qingdao, Shandong 266237, China;

² Shandong Provincial Key Laboratory of Laser Technologies and Applications, Qingdao, Shandong 266237, China;

³ State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, Shanxi University, Taiyuan, Shanxi 030006, China

Abstract

Significance Ultrafast lasers with pulse durations on the orders of picosecond and femtosecond are widely used in various fields, such as supercontinuum generation, photoelectron microscopy, and material micromachining. The traditional high-power ultrafast lasers with repetition rates of kHz—MHz exhibit a large heat-affected zone during material micromachining, leading to unpleasant damage to the materials. The emergence of pulse lasers with ~GHz repetition rate can effectively solve this problem. Combining the very high repetition rate of ~GHz and novel burst mode processing technique, the GHz “burst-mode” femtosecond lasers have been used to ablate the target materials

before the residual heat deposited by previous pulses diffuses away from the processing region, which can not only improve the ablation efficiency, but also ensure excellent processing quality.

Due to its short wavelength, high resolution, and high photon energy, deep ultraviolet (DUV) lasers are widely used in chip defect detection and photoelectron spectroscopy experiments. In order to obtain DUV lasers with high beam quality, high coherence and high repetition rate, near-infrared all-solid-state lasers are usually used as the fundamental drivers to DUV lasers through the nonlinear optical crystals-based multi-stage frequency conversion technique. Due to the high peak powers and high wavelength conversion efficiencies of the near-infrared pulsed lasers with repetition rates of kHz and MHz, it is easy to obtain high-power DUV lasers for lasers with those repetition rates. At present, the repetition rates of industrial high-power ultraviolet lasers are usually in kHz and MHz range. There are very few research results on DUV lasers with \sim GHz repetition rate, which greatly limits the application potential of DUV lasers in the above aspects.

In recent years, various methods have been proposed to achieve DUV laser pulses with repetition rates of \sim GHz. However, these methods still face a series of challenges. Therefore, it is necessary to summarize recent development tendency of technology of high repetition rate ultrashort laser pulse generation and frequency conversion.

Progress There are many methods for producing GHz bursts of laser pulses. Femtosecond pulses at multi-GHz repetition rates can be obtained directly from the oscillators with harmonic mode-locking technique, semiconductor saturable absorber mirror and Kerr lens based passive mode-locking techniques. Typical pulse repetition rates of pulse trains generated by mode-locked fiber oscillators are in the range from tens up to hundreds of MHz. The GHz pulses can be obtained through repetition rate multiplication techniques. In this study, we briefly illustrate their pros and cons and review their recent developments. The emergence of multi-stage amplification systems has increased the average power of \sim GHz femtosecond pulses in the near-infrared band to the order of hundreds of watts (Table 1).

There are many methods for producing DUV lasers. For the method of nonlinear crystal frequency conversion, the research of 266/258 nm DUV nanosecond lasers (Table 3), picosecond lasers (Table 4) and femtosecond lasers (Table 5), as well as 213/206 nm (Table 6) and 193 nm DUV lasers (Table 7) in the past two decades are summarized. Nowadays, the average powers of high power 355 nm ultraviolet lasers have reached hundreds of watts, and the market is relatively mature. Although commercialization of DUV lasers with wavelength below 300 nm is still not mature, the current 266 nm laser developed in the laboratory can achieve an output average power of 50.1 W, which is about to enter the order of 100 W, and has passed the stability test for more than 5000 hours of continuous operation.

For high power GHz repetition rate near-infrared femtosecond pulse lasers, the difficulty lies in the generation of GHz seed. For GHz repetition rate amplifier, it is relatively easy to obtain higher average powers due to low single pulse energy and low peak power. For GHz repetition rate DUV femtosecond pulse laser source, the difficulty is not in the generation of the fundamental frequency laser, but in the low peak power of the fundamental frequency laser and the thin nonlinear medium used, which leads to low nonlinear frequency conversion efficiency, and it is difficult to obtain GHz femtosecond pulse laser in the DUV band (Fig. 6).

Conclusion and Prospect In recent years, the French company Amplitude has put forward the idea of "GHz Revolution", which mainly refers to the development of ultra-short pulse laser sources with pulse repetition rate in GHz. The emergence of multi-stage amplification systems has increased the average power of GHz femtosecond pulses in the near-infrared band to the order of hundreds of watts, which successfully solves the problem of the GHz pulse in industrial processing. Therefore, the development of high-power near-infrared band GHz repetition rate pulse lasers is relatively mature at present. Coupled with the continuous improvement of nonlinear frequency conversion technology, DUV laser repetition rate has entered the GHz. Although the industrialization and commercialization of DUV laser techniques still face some problems, such as easily damaged crystal coating, low wavelength conversion efficiency of DUV lasers, and long-term unstable operation of high-power DUV lasers, these problems have been gradually solved in practice. With the further maturity of frequency conversion and power amplification techniques, perhaps kilowatt-level DUV lasers will appear in the next 5—10 years, all of which will certainly make a breakthrough in the secondary laser source based on ultraviolet laser and DUV laser.

Key words lasers; deep ultraviolet laser; GHz; high repetition rate; nonlinear optics

OCIS codes 140.3460; 140.3610; 190.2620