

## 高重复频率 192~300 nm 连续可调谐超短脉冲激光器

刘华刚, 阮开明, 李锦辉, 史斐, 黄见洪, 林文雄\*

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, 福建 福州 350002

**摘要** 报道了一种高重复频率、宽波段连续可调谐的紫外/深紫外超短脉冲激光器, 调谐范围为 192~300 nm。该激光器采用可调谐的钛宝石锁模激光器作为基频光源, 通过优化设计多级倍频/和频组合与非线性晶体角度, 分三个波段进行频率上转换, 分别产生了 192~210 nm、210~250 nm、250~300 nm 的深紫外/紫外激光, 最终合成一路覆盖 192~300 nm 的连续可调谐超短脉冲激光, 同时还获得了调谐范围为 375~500 nm 的紫外/可见光波段的激光输出。光束切换、晶体角度调节、群速补偿、光束指向稳定等过程的电控设计, 使得激光器在整个调谐过程中可由程序控制, 无需复杂的人工调节, 具备了单台激光器的可操控性和实用性。

**关键词** 激光器; 非线性激光变频; 深紫外激光; 超快激光; 可调谐

中图分类号 O437.1

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL231524

## 1 引言

紫外/深紫外短波长超快激光器由于兼具超高时间和空间分辨率, 在紫外半导体器件开发、超快光谱、高分辨光电探测、极紫外激光产生等领域中都有着重要的应用<sup>[1-5]</sup>。在紫外和深紫外波段实现波长连续可调谐可以扩大这类激光器的适用范围, 以满足不同材料和领域的应用需求。目前, 能够直接产生紫外/深紫外波段激光的主要方式是准分子激光器<sup>[6]</sup>, 但气体激光器体积较大, 不易获得超短脉冲, 且只能输出特定的几个波长。受限于激光增益介质激活离子的能带结构, 固体增益介质尚无法直接实现 300 nm 以下的紫外/深紫外激光输出。利用非线性光学材料(包括晶体、液体和气体)对可见或近红外波段的激光进行频率上转换是当前获得紫外/深紫外短波长激光的一条常用且简单便捷的途径<sup>[7-10]</sup>。这种方式不受增益介质能级结构的限制, 可实现波长的大范围调谐, 通常是利用一个宽带可调谐的基频光源, 通过多级倍频或和频, 获得其  $n$  次谐波<sup>[8-9]</sup>。基频光源通常采用基于宽带增益介质的激光器, 如钛宝石(Ti:sapphire)或掺 Yb 光纤激光器<sup>[11-14]</sup>, 或者是基于光参量效应的可调谐激光器, 如光参量振荡器(OPO)或光参量放大器(OPA)<sup>[15-16]</sup>。Ti:sapphire 激光晶体具有 600~1100 nm 的超宽荧光光谱, 用锁模 Ti:sapphire 激光器作为基频光源进行倍频或和频是获得波长可调谐紫外/深紫外短波长超短脉冲激光的最理想方式。早在 1991 年, Nebel 等<sup>[12]</sup>用锁模的 Ti:sapphire 激光作

为基频光源, 利用偏硼酸钡(BBO)、三硼酸锂(LBO)等晶体进行三倍频、四倍频, 获得了高重复频率的 205~213 nm、260~280 nm 的可调谐紫外超短脉冲激光。但受 BBO 晶体相位匹配的限制, 其波长没有达到 200 nm 以下, 且两个调谐波段是间断的, 没有完全覆盖。其后, 多个研究团队利用 BBO 和低温相偏硼酸钡掺杂(BBSAG)晶体在和频条件下支持更短波长的相位匹配的特性, 将超短脉冲可调谐的波长延伸到了 200 nm 以下<sup>[14, 17-19]</sup>。得益于优良紫外非线性晶体氟代硼铍酸钾(KBBF)的应用, Ti:sapphire 激光器的五倍频可以将波长进一步扩展到 160 nm 以下的真空紫外波段<sup>[20-21]</sup>。另一种比较常用的波长调谐方式是采用光参量振荡器或光参量放大器作为频率上转换的基频光源, 通过非线性晶体相位匹配角的调谐来突破增益介质发射谱的限制, 实现具有更大自由度的更宽范围的波长调谐。利用 OPO/OPA 先后实现了覆盖 300~970 nm、250~355 nm、189~240 nm、385~400 nm 宽波段的连续可调谐的飞秒激光<sup>[15-16, 22-24]</sup>。上述报道的激光器有些调谐范围很宽, 但无法覆盖 200 nm 以下至 300 nm 的紫外/深紫外波段<sup>[15-16, 23-24]</sup>, 而能够在深紫外波段调谐的激光器大多只能在一个较窄的波段范围内调谐或者是固定在某个波长<sup>[14, 17-22]</sup>, 无法在 200~300 nm 整个波段内连续可调。Meguro 等<sup>[25]</sup>报道了一种 198~300 nm 连续可调谐纳秒激光器的实现方式, 但需要与另外一台同步的 1064 nm 激光器进行和频, 以实现 198~234 nm 波段的调谐, 整个系统复杂庞大。

收稿日期: 2023-12-13; 修回日期: 2024-01-19; 录用日期: 2024-02-07; 网络首发日期: 2024-02-20

基金项目: 国家自然科学基金(62275247, 11327804)

通信作者: \*wxlin@fjirsm.ac.cn

本文报道了一种高重复频率、宽波段可调谐紫外/深紫外超短脉冲激光器,调谐范围为 192~300 nm,且连续无间断可调。该激光器采用可调谐的钛宝石锁模激光器作为基频光源,通过优化设计倍频/和频级次以及非线性晶体角度,利用多级倍频/和频,分三个波段分别产生了 192~210 nm、210~250 nm、250~300 nm 的深紫外/紫外激光,最终合成一路输出覆盖 192~300 nm 的连续可调谐超短脉冲激光。本文详细介绍了该激光器的设计方案、涉及的关键技术以及实验结果。

## 2 激光系统设计

该激光系统采用商用的 Ti:sapphire 锁模激光器作为基频光源,其输出波长在 690~1040 nm 范围内连

续可调,脉冲宽度为 120 fs,重复频率为 80 MHz。理论上,通过级联倍频与和频,可以将基频光转换到 190~300 nm 甚至范围更广的紫外/深紫外波段。但实际上,如此大范围的波长调谐会导致晶体角度偏转过大,造成倍频效率的大幅下降。另外,BBSAG 晶体的直接倍频能获得的最短紫外波长是 205 nm,小于 205 nm 的波长需要采用多级和频的方式获得<sup>[14,17]</sup>。基于上述原因,该激光器综合考虑了晶体的相位匹配角的调谐范围,分三个波段来产生覆盖 192~300 nm 波段的超短脉冲激光,激光器的整体结构如图 1 所示,其中 SHG 为二倍频,THG 为三倍频,FHG 为四倍频,SFG 为和频,M 为反射镜片,D 为双色镜,S 为分束镜,B.S. 为光束切换装置,B.C. 为合束器,PSD 为位置探测器。

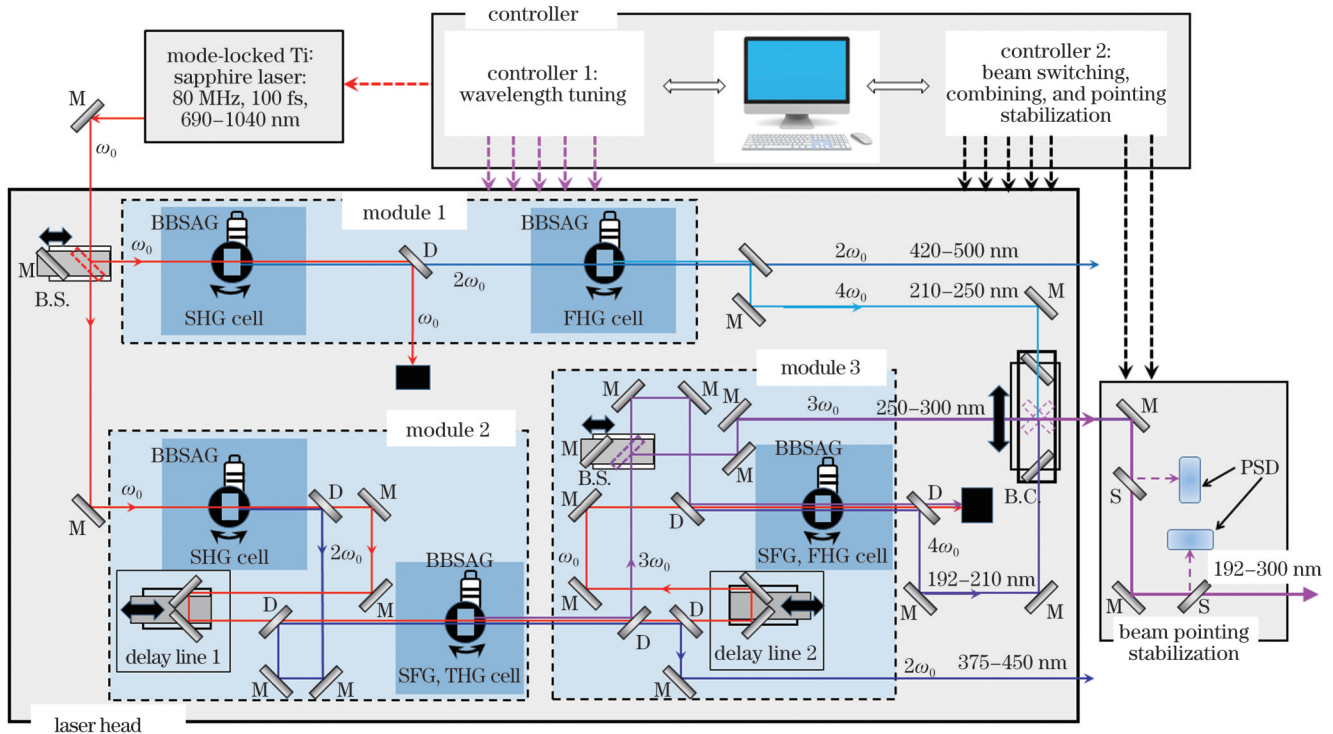


图 1 192~300 nm 连续可调谐深紫外/紫外激光器的结构示意图

Fig. 1 Schematic of 192~300 nm continuously tunable deep ultraviolet/ultraviolet laser

如图 1 所示,由 Ti:sapphire 飞秒激光器输出的基频光束(频率为  $\omega_0$ )经过一个光束切换器,该装置通过电控平移台控制反射镜的插入以切换光束的方向。当基频光进入第一个激光变频模块(module 1)时,可通过直接的二倍频( $\omega_0 + \omega_0 \rightarrow 2\omega_0$ )和四倍频( $2\omega_0 + 2\omega_0 \rightarrow 4\omega_0$ )来产生 210~250 nm 波段的激光。二倍频和四倍频均采用 BBSAG 晶体,这种晶体是一种改进的 BBO 晶体<sup>[14]</sup>,其双折射系数、相位匹配条件与 BBO 晶体相近,但具有更优良的抗潮解性。实验中所采用的晶体参数如表 1 所示。两块晶体的角度分别按照中心波长 894 nm 和 438 nm 的倍频来订制,且每块晶体都固定在一个电控旋转台上。在调谐过程

中,首先将基频光波长调到所需的波长,再将晶体角度旋转到相应的相位匹配角以获得最大的非线性变频效率。

250~300 nm 波段是由第二个激光变频模块(module 2)产生。module 2 包含一个倍频单元(SHG cell,  $\omega_0 + \omega_0 \rightarrow 2\omega_0$ )和一个和频单元(THG cell,  $2\omega_0 + \omega_0 \rightarrow 3\omega_0$ ),用于获得基频光的三次谐波。在基频光与二次谐波进行和频之前,利用一个延迟线(delay line 1)补偿两者之间的群速延迟。与 module 1 类似,通过调节基频光波长和晶体角度来实现输出波长的调谐。产生的三次谐波被一个光束切换装置切换到不同的光路,其中一路被切换到一个和束器中后与其

表 1 倍频与和频的晶体参数  
Table 1 Crystal parameters for SHG and SFG

Wavelength range	Module No.	Frequency conversion	Crystal and type of phase matching	Size / (mm×mm×mm)	Crystal angle / (°)
210–250 nm	Module 1	SHG: $\omega_0 + \omega_0 \rightarrow 2\omega_0$	BBSAG, Type I	5.5×5.5×1	26.3
		FHG: $2\omega_0 + 2\omega_0 \rightarrow 4\omega_0$	BBSAG, Type I	5.5×5.5×1	67.55
250–300 nm	Module 2	SHG: $\omega_0 + \omega_0 \rightarrow 2\omega_0$	BBSAG, Type I	5.5×5.5×1	29.2
		THG: $2\omega_0 + \omega_0 \rightarrow 3\omega_0$	BBSAG, Type I	5.5×5.5×1	44.4
192–210 nm	Module 3	FHG: $3\omega_0 + \omega_0 \rightarrow 4\omega_0$	BBSAG, Type I	5.5×5.5×1	64.8

他波段合为一路输出,另一路被切换到第三个激光变频模块 module 3 中继续进行和频以产生更短的波长。

BBSAG 晶体的直接倍频能够支持的最短波长是 205 nm,且在 210 nm 以下相位匹配角接近  $90^\circ$ ,使得有效非线性吸收( $d_{\text{eff}}$ )接近 0,不利于高效的倍频产生,因此 210 nm 及以下的波段需要采用和频的方式来获得。如图 1 中的 module 3 所示,其中 192~210 nm 波段的四次谐波( $3\omega_0 + \omega_0 \rightarrow 4\omega_0$ )通过 module 2 中剩余的基频光与三次谐波的和频来实现。与 module 2 类似,需要一个延迟线(delay line 2)来补偿基频光与三次谐波之间的群速延迟。

三个波段分别产生后被导向一个由电动移动平台控制的光路合束器。通过平台移动反射镜将三个波段导向同一个出口,方便其后的激光应用。在合并为一块之后,光束被引入一套光束指向稳定系统(BPS),以补偿光束在切换、倍频、调谐、合束等过程中产生的指向偏离。

### 3 实验结果与讨论

通过光束切换装置将基频光分别注入 module 1 和 module 2,首先进行了二次谐波( $\omega_0 + \omega_0 \rightarrow 2\omega_0$ )产生实验。在基频光波长调谐的同时,调整二倍频晶体的相位匹配角,直至获得最大的倍频效率。其中 module 1 产生 210~250 nm 波段,所对应的基频光从 840 nm 被调谐到 1000 nm,二次谐波范围为 420~500 nm。module 2 和 module 3 基于三次谐波和四次谐波产生 250~300 nm 和 192~210 nm 波段,对应的基频光从 750 nm 被调谐到 900 nm,二次谐波的范围为 375~450 nm。在整个调谐范围内,基频光从 750 nm 被调谐至 1000 nm,调谐功率随波长的变化如图 2(a)所示,通过二次谐波获得了 375~500 nm 范围的可见波段超短脉冲激光,二次谐波将在后续变频之后由双色镜过滤输出。图 2(b)给出了两个模块中所获得的二次谐波功率随调谐波长的变化,所获得的最大倍频功率为 1.55 W@390 nm,倍频效率为 53.8%(对应基频光功率为 2.88 W@780 nm)。随着波长的调谐,二次谐波功率的变化呈现倒“V”形分布,主要有两个原

因:其一是基频光功率在 780~800 nm 处最大,朝短波和长波方向调谐时都会降低;其二是因为在中心波长朝两边调谐时,晶体旋转角度增大,导致表面反射损耗增大。

在超短脉冲的倍频过程中,非线性晶体的色散以及双折射效应必然带来空间走离和群速走离。另外,波长调谐范围很大,相应地,非线性晶体旋转角度也较大,故基频光不再垂直入射非线性晶体,这也会导致不同波长之间的空间走离。在该激光系统中,群速走离由延迟线来补偿,空间走离则通过采用两块相同长度的晶体来解决。如图 3 所示,两块晶体在光路中的位置呈镜像对称,则第二块晶体可以产生与第一块晶体相反的走离角,补偿光束在空间上的走离。同时在波长调谐时,两块晶体的相位匹配角朝相反方向旋转,以确保它们在调谐过程中仍然保持相同的相位匹配角。

在 module 1 中,产生二次谐波之后,继续进行倍频( $2\omega_0 + 2\omega_0 \rightarrow 4\omega_0$ ),可以获得 210~250 nm 波段的四次谐波紫外激光。根据需求设定基频光波长为某一特定波长,调节四倍频晶体的相位匹配角,以获得最大的四倍频效率。图 2(c)给出了 210~250 nm 激光调谐功率的变化。在这一波段获得的最大功率可以达到 53 mW@220 nm,从基频光到三次谐波的转换效率为 2.37%。

在 module 2 模块中,二倍频之后,利用剩余基频光与二次谐波进行和频( $2\omega_0 + \omega_0 \rightarrow 3\omega_0$ ),获得三次谐波。这一波段基频光从 750 nm 调谐到 900 nm,产生的三次谐波的范围为 250~300 nm。获得的三次谐波的功率如图 2(d)所示。这一波段的最大功率达到了 199 mW,对应的转换效率达到了 6.98%。将 module 2 产生的三次谐波光束切换输入至 module 3 中,继续与剩余的基频光进行和频( $3\omega_0 + \omega_0 \rightarrow 4\omega_0$ ),则可以产生更短波长的四次谐波,这种多级和频结构将突破 BBSAG 晶体直接倍频无法满足相位匹配条件的限制,将产生的波长扩展到 205 nm 以下。这一波段产生的波长可从 192 nm 调谐至 210 nm。四次谐波功率随调谐波长的变化如图 2(e)所示,获得的最大功率达到了 5.8 mW@200 nm,从基频光到四次谐波的转换效率为 0.21%。

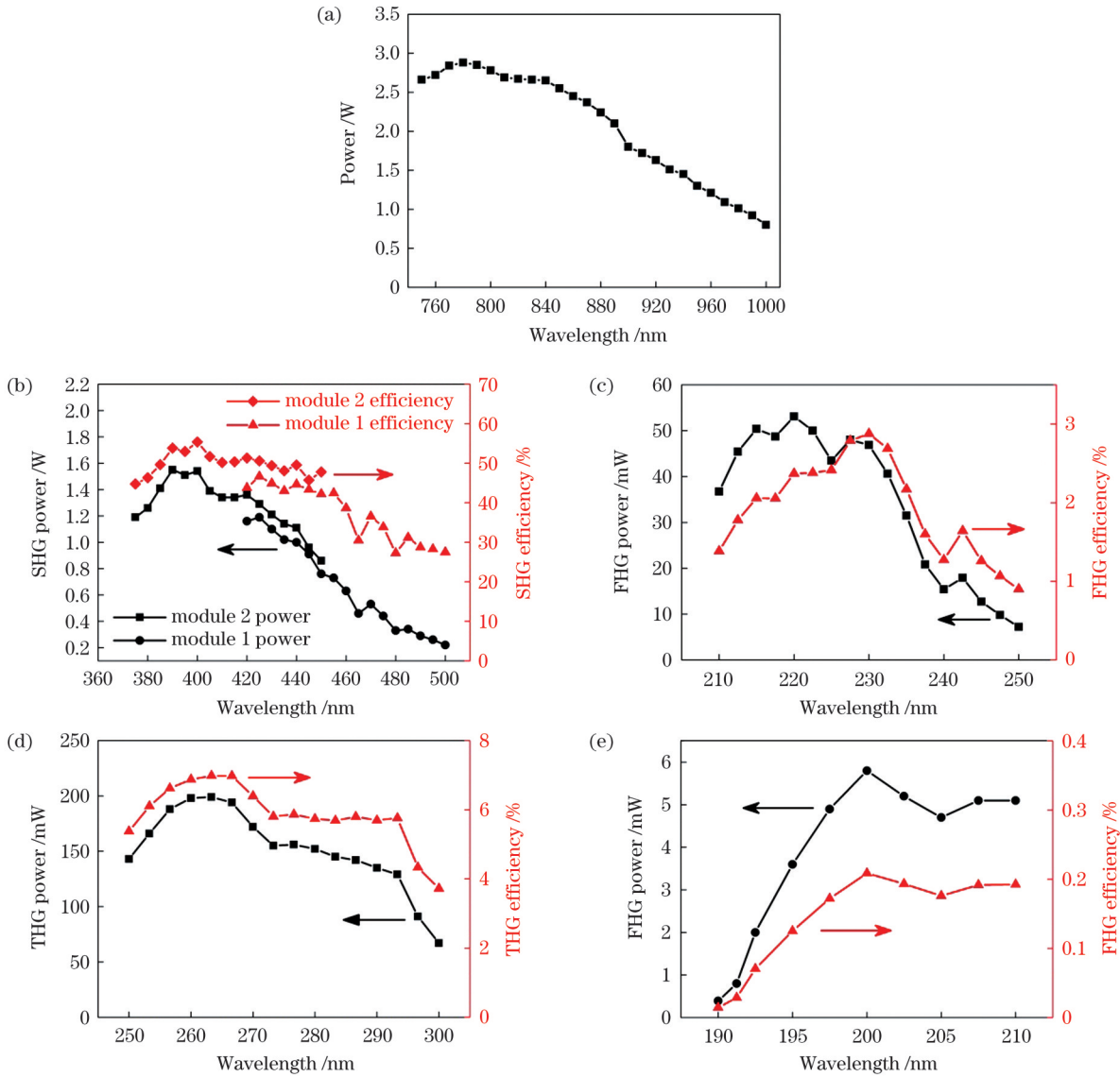


图 2 各级激光的变频功率与转换效率。(a)基频光;(b)二倍频(375~500 nm);(c)直接四倍频(210~250 nm);(d)和频三次谐波(250~300 nm);(e)和频四次谐波(192~210 nm)

Fig. 2 Frequency conversion power and conversion efficiency of laser at each stage. (a) Fundamental laser; (b) second harmonic generation (375–500 nm); (c) direct fourth harmonic generation (210–250 nm); (d) third harmonic generation from sum frequency (250–300 nm); (e) fourth harmonic generation from sum frequency (192–210 nm)

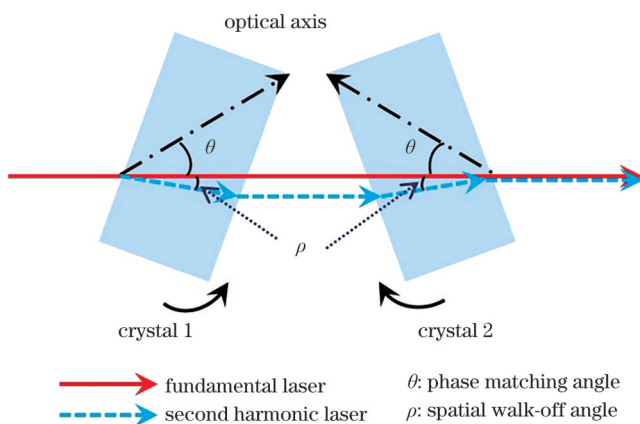


图 3 空间走离补偿示意图

Fig. 3 Schematic of compensation of spatial walk-off

这一波段的整体倍频效率较低,主要是由于经过了三级转换,且在这个波段,非线性晶体的有效非线性系数较低。获得的最短深紫外激光波长达到了 192 nm,接近该晶体能够获得的最短波长的极限(189 nm)。

在三个波段分别产生后,通过光路合束器将它们合为一路输出,则整个系统可实现覆盖 192~300 nm 的紫外到深紫外宽波段的连续调谐,其调谐波长如图 4 所示。

基于 module 3 的和频装置评估了三次谐波的脉冲宽度。通过移动基频光与三次谐波之间的时域上的延迟,测量了两者之间的互相关曲线,如图 5 所示。其互相关曲线宽度为 640 fs,假设基频光与三次谐波为具有相同宽度的高斯脉冲,则三次谐波的宽度约为

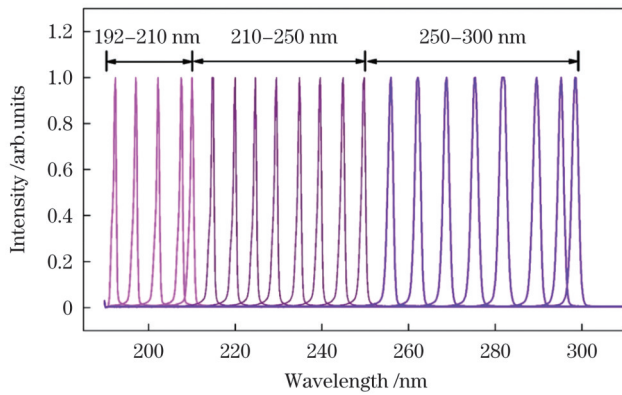


图4 覆盖192~300 nm波段的连续可调谐深紫外/紫外激光输出光谱

Fig. 4 Output spectra of continuously tunable deep ultraviolet/ultraviolet laser covering 192-300 nm band

452 fs,相较于基频光有较大的展宽。主要原因是在整个频率上转换过程中,多个反射镜和透镜引入的色散会展宽飞秒脉冲的宽度。另外,倍频与和频过程中光束经过非线性晶体,不同波长之间的群速走离也会导致脉冲宽度增加。

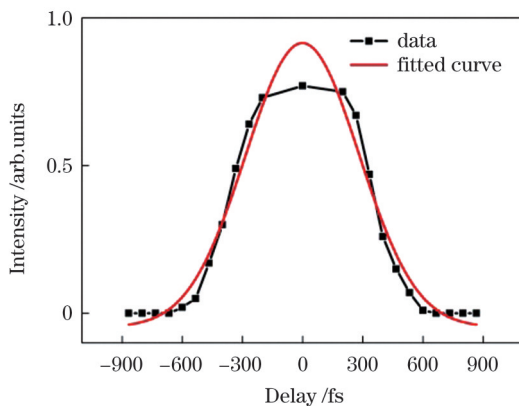


图5 波长为266.7 nm的三次谐波的互相关曲线

Fig. 5 Cross-correlation curve of third harmonic with wavelength of 266.7 nm

分三个波段产生的紫外/深紫外光束经过光路合束器后合并为一束,然后利用一套BPS校正激光频率转换过程产生的指向偏离,其结构如图1所示。这套BPS系统由两个二维电控反射镜、两个分束取样镜和两个位置探测器PSD组成,利用两点定位的原理确保光束指向的稳定性。两个取样镜分别取光路中两个位置上的一部分光,并将其投射到PSD检测光斑的位置,如果该位置的光斑偏离设定的中心位置,则反馈给对应的电控反射镜以微调光束指向,直至两个PSD检测不到光斑位置的偏离。经过BPS作用后的光束具有较高的指向稳定性,图6显示了在波长266.7 nm处光束指向长时间的监测结果,光斑指向探测器放置在输出口外1 m处。结果显示,在2 h的监测时长内,偏离标准差在*x*和*y*方向上分别为1.44 μm

和2.64 μm,光斑中心位置偏离的最大范围分别小于15 μm和35 μm,考虑到距离出口1 m的监测距离,最大偏离角度在15 μrad(*x*方向)和35 μrad(*y*方向)范围内。

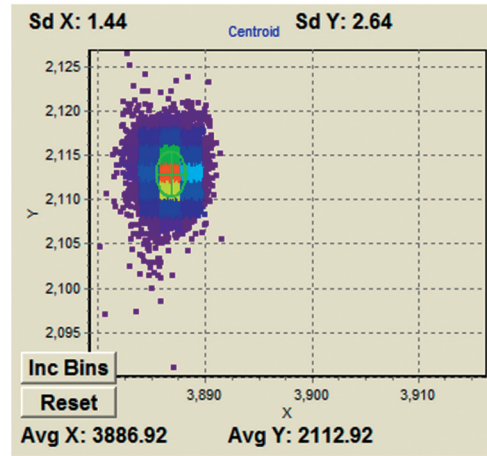


图6 光束指向稳定性的长时间监测

Fig. 6 Long term monitoring of beam pointing stability

该可调谐激光器的覆盖波长范围大,且分成多个波段产生,各段之间还存在光路切换、合束等过程,各个波段模块内部也需要执行晶体旋转、群速走离补偿、空间走离补偿等操作。确保调谐过程连续无间断、各波段之间无缝切换,并从同一出口输出,是实现该激光设备满足实际应用要求的前提条件。为此采取了以下关键措施:1) 设置两个控制器,其中一个用于控制电控旋转台,执行晶体旋转和波长调谐工作,另一个控制各波段之间光路切换、群速走离补偿、合束以及指向稳定性调节。2) 通过前期精确的测试,建立输出波长与基频光波长、倍频单元、晶体调谐角度之间的一一对应关系,确保每一个输出波长都对应唯一的一组倍频模块和一组晶体相位匹配角度数据。3) 根据波长与各参量的对应关系,通过编制程序来控制光路切换、倍频模块的选择、合束、晶体角度旋转以及指向稳定性调节,实现自动化的控制。因此,从整体上来说,尽管激光器的整个调谐范围是分段产生的,但以上技术措施保证了其在192~300 nm范围内的自动化连续调谐,且通过一个出口稳定输出,具备了单台激光器的可操作性和实用性。

## 4 结 论

利用多级倍频及和频组合,分三个波段实现了覆盖192~300 nm深紫外/紫外波段的连续可调谐超短脉冲激光输出,重复频率为80 MHz。同时还获得了调谐范围为375~500 nm的紫外/可见光波段的超短脉冲。通过光束切换、晶体角度调节、群速补偿等过程的电控设计,激光器的整个调谐过程可由程序控制,避免了复杂的手动调节。利用光束指向稳定系统,还可实现三个波段从同一出口输出,并确保指向稳定性。该

可调谐的超短脉冲激光器由于覆盖了 200 nm 以下到 300 nm 的波段,可作为一种高时空分辨率的激发和探测光源,用于深紫外/紫外波段半导体中光电相互作用微观机理的研究以及这一波段的半导体材料和器件的开发。

### 参 考 文 献

- [1] Yang W X, Zhao Y K, Wu Y Y, et al. Deep-UV emission at 260 nm from MBE-grown AlGaIn/AlN quantum-well structures [J]. *Journal of Crystal Growth*, 2019, 512: 213-218.
- [2] Shatalov M, Sun W H, Lunev A, et al. AlGaIn deep-ultraviolet light-emitting diodes with external quantum efficiency above 10% [J]. *Applied Physics Express*, 2012, 5(8): 082101.
- [3] Huber B, Pres S, Wittmann E, et al. Space- and time-resolved UV-to-NIR surface spectroscopy and 2D nanoscopy at 1 MHz repetition rate[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2019, 90(11): 113103.
- [4] Ran Q D, Hao L, Kun L, et al. High power DUV laser for bright high harmonic generation in gas[C]//2021 Photonics North (PN), May 31-June 2, 2021, Toronto, ON, Canada. New York: IEEE Press, 2021.
- [5] Consani C, Auböck G, van Mourik F, et al. Ultrafast tryptophan-to-heme electron transfer in myoglobins revealed by UV 2D spectroscopy[J]. *Science*, 2013, 339(6127): 1586-1589.
- [6] 梁勛, 沈启辉, 邵景珍, 等. 放电泵浦深紫外准分子激光关键技术与应用[J]. *激光与光电子学进展*, 2023, 60(19): 1900006.  
Liang X, Shen Q H, Shao J Z, et al. Discharge-pumped excimer laser technologies and applications[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2023, 60(19): 1900006.
- [7] 赵智刚, 玄洪文, 王景冲, 等. 真空紫外 193 nm 波段固体激光器研究进展综述[J]. *光学学报*, 2022, 42(11): 1134010.  
Zhao Z G, Xuan H W, Wang J C, et al. Research progresses on vacuum-ultraviolet 193-nm band solid-state lasers[J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(11): 1134010.
- [8] 窦微, 侯珊珊, 郑志远, 等. 全固态单纵模 273 nm 深紫外激光器研制[J]. *中国激光*, 2023, 50(23): 2301006.  
Dou W, Hou S S, Zheng Z Y, et al. Development of all solid state single longitudinal mode 273 nm deep-ultraviolet laser[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2023, 50(23): 2301006.
- [9] Meng X H, Liu H G, Huang J H, et al. Generation of tunable ultrafast ultraviolet third harmonic by collinear compensation of group-velocity mismatch[J]. *Optics Communications*, 2015, 353: 96-100.
- [10] 赵志斌, 陈浩, 徐东昕, 等. LD 端面抽运全固态声光调 Q 228.5 nm 深紫外激光器[J]. *中国激光*, 2022, 49(3): 0315001.  
Zhao Z B, Chen H, Xu D X, et al. LD end-pumped all-solid-state acousto-optical Q-switched 228.5 nm deep ultraviolet laser[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2022, 49(3): 0315001.
- [11] 刘华刚, 胡明列, 刘博文, 等. 基于光子晶体光纤飞秒激光技术的高功率紫外激光源[J]. *中国激光*, 2009, 36(11): 2812-2816.  
Liu H G, Hu M L, Liu B W, et al. High power ultraviolet laser source based on photonic crystal fiber femtosecond laser system[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2009, 36(11): 2812-2816.
- [12] Nebel A, Beigang R. External frequency conversion of cw mode-locked Ti: Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> laser radiation[J]. *Optics Letters*, 1991, 16(22): 1729-1731.
- [13] Liu H G, Hu M L, Liu B W, et al. Compact high-power multiwavelength photonic-crystal-fiber-based laser source of femtosecond pulses in the infrared-visible-ultraviolet range[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2010, 27(11): 2284-2289.
- [14] Wang R, Teng H, Wang N, et al. Tunable deep ultraviolet single-longitudinal-mode laser generated with Ba<sub>1-x</sub>B<sub>2-y-z</sub>O<sub>4</sub>Si<sub>x</sub>Al<sub>y</sub>Ga<sub>z</sub> crystal[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(7): 2105-2108.
- [15] Bradler M, Nielsen F D, Eckert C E, et al. A broad and tunable 250- to 430-nm source for microscopy and lifetime measurements by frequency doubling of a 78-MHz-picosecond white-light laser[J]. *Applied Physics B*, 2014, 116(4): 875-882.
- [16] Schriever C, Lochbrunner S, Krok P, et al. Tunable pulses from below 300 to 970 nm with durations down to 14 fs based on a 2 MHz ytterbium-doped fiber system[J]. *Optics Letters*, 2008, 33(2): 192-194.
- [17] Rotermund F, Petrov V. Generation of the fourth harmonic of a femtosecond Ti: sapphire laser[J]. *Optics Letters*, 1998, 23(13): 1040-1042.
- [18] Zhu J F, Ling W J, Wang Z H, et al. High-energy picosecond near-vacuum ultraviolet pulses generated by sum-frequency mixing of an amplified Ti: sapphire laser[J]. *Applied Optics*, 2007, 46(25): 6228-6231.
- [19] Petrov V, Rotermund F, Noack F, et al. Frequency conversion of Ti: sapphire-based femtosecond laser systems to the 200-nm spectral region using nonlinear optical crystals[J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 1999, 5(6): 1532-1542.
- [20] Zhang H, Wang G, Guo L, et al. 175 to 210 nm widely tunable deep-ultraviolet light generation based on KBBF crystal[J]. *Applied Physics B*, 2008, 93(2): 323-326.
- [21] Kanai T, Kanda T, Sekikawa T, et al. Generation of vacuum-ultraviolet light below 160 nm in a KBBF crystal by the fifth harmonic of a single-mode Ti: sapphire laser[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2004, 21(2): 370-375.
- [22] Homann C, Lang P, Riedle E. Generation of 30 fs pulses tunable from 189 to 240 nm with an all-solid-state setup[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2012, 29(10): 2765-2769.
- [23] Gu C L, Hu M L, Fan J T, et al. High power tunable femtosecond ultraviolet laser source based on an Yb-fiber-laser pumped optical parametric oscillator[J]. *Optics Express*, 2015, 23(5): 6181-6186.
- [24] Ghotbi M, Esteban-Martin A, Ebrahim-Zadeh M. Tunable high-repetition-rate femtosecond pulse generation in the ultraviolet[J]. *Optics Letter*, 2008, 33(4): 345-347.
- [25] Meguro T, Caughy T, Wolf L, et al. Solid-state tunable deep-ultraviolet laser system from 198 to 300 nm[J]. *Optics Letters*, 1994, 19(2): 102-104.

# High-Repetition-Rate Continuously Tunable Ultra-Short Pulse Laser Across Range from 192 nm to 300 nm

Liu Huagang, Ruan Kaiming, Li Jinhui, Shi Fei, Huang Jianhong, Lin Wenxiong\*

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

## Abstract

**Objective** Ultraviolet and deep ultraviolet ultrafast lasers have important applications in the development of ultraviolet semiconductor devices, ultrafast spectroscopy, and extreme ultraviolet laser generation owing to their advantages, such as ultrahigh temporal and spatial resolution. Continuous wavelength tuning in the ultraviolet and deep-ultraviolet ranges can expand the applicability of such lasers to satisfy the application requirements of different materials and research fields. However, many technical challenges remain for continuously tunable ultrashort pulse lasers that cover ultraviolet and deep-ultraviolet wavelengths below 200 nm to 300 nm. This study reports the development of a high-repetition-rate continuously tunable ultraviolet/deep ultraviolet ultrashort pulse laser with a tuning range covering the 192–300 nm wavelength band.

**Methods** A commercial tunable Ti : sapphire mode-locked laser with a continuously tunable output wavelength in the range of 690–1040 nm, a pulse width of 120 fs, and a repetition rate of 80 MHz is used as the fundamental laser. The BBSAG crystal, an improved BBO crystal, is used as the frequency conversion medium. In theory, a fundamental laser wavelength can be converted into a wide range of ultraviolet/deep-ultraviolet wavelengths of 190–300 nm through cascaded frequency doubling and sum-frequency mixing. However, tuning the crystal angle over a wide range can significantly decrease the frequency-doubling efficiency. In addition, owing to the limitations of the phase-matching conditions of BBSAG crystals, laser wavelengths below 205 nm can be generated only through multistage sum-frequency mixing. Based on these factors, the laser is divided into three wavelength bands to generate ultrashort pulse lasers covering a wide range of 192–300 nm by optimizing the design of the multilevel frequency-doubling/sum-frequency mixing and nonlinear crystal angle.

**Results and Discussions** The laser system consists of three laser modules. In Module 1, a laser in the range of 210–250 nm is generated by direct frequency doubling ( $\omega_0 + \omega_0 \rightarrow 2\omega_0$ ) and frequency quadrupling ( $2\omega_0 + 2\omega_0 \rightarrow 4\omega_0$ ). The 250–300 nm wavelength band is generated using the second frequency-conversion module, which contains a frequency doubling unit ( $\omega_0 + \omega_0 \rightarrow 2\omega_0$ ) and a sum-frequency mixing unit ( $2\omega_0 + \omega_0 \rightarrow 3\omega_0$ ) to obtain the third harmonic of the fundamental laser. A delay line is introduced before the sum frequency of the fundamental laser and second harmonic to compensate for the group-velocity delay between the fundamental and second harmonics. Similar to Module 1, the output wavelength is tuned by adjusting the fundamental wavelength and crystal angle. The third harmonic is generated by directing the beam into different optical paths using a beam switcher, where one path is sent to a beam combiner and combined with the other two to form one output, and the other path is switched to the third laser frequency-conversion module to continue sum-frequency mixing to generate a shorter wavelength. The shortest wavelength that a BBSAG crystal can support for direct frequency doubling is 205 nm, and the phase-matching angle is approximately  $90^\circ$  at a wavelength of approximately 210 nm. The effective nonlinear absorption ( $d_{\text{eff}}$ ) is close to zero at this phase-matching angle, which results in inefficient frequency doubling. Therefore, sum-frequency mixing is adopted to generate wavelengths of approximately 210 nm and lower. The fourth harmonic generation of the wavelength range 192–210 nm ( $\omega_0 + 3\omega_0 \rightarrow 4\omega_0$ ) is achieved through the sum-frequency mixing of the remaining fundamental laser and the generated third harmonic from Module 2 after the generation of the third harmonic. Similar to Module 2, a delay line is required to compensate for the group-velocity delay between the fundamental laser and third harmonic.

**Conclusions** After the three bands are generated, they are directed to an optical path combiner controlled using an electric mobile platform. By adjusting the position of the reflector on the platform, the three bands are directed towards a single output, facilitating subsequent laser applications. After they merge into one path, the beam is introduced into a beam-pointing stabilization system (BPS) to compensate for the position deviation generated by the beam during the switching, frequency doubling, wavelength tuning, and beam combination. When the three bands are generated at 192–210 nm, 210–250 nm, and 250–300 nm, respectively, they are combined into one optical path to output. Finally, a continuous tunable ultrashort pulse laser covering the 192–300 nm wavelength range is achieved (Figs. 2 and 4). Through the electronic control design of beam switching, crystal-angle adjustment, group-velocity compensation, and beam-pointing stabilization, the entire tuning process of the laser can be controlled using a program that does not require complex manual adjustment, which would provide a single laser with high controllability and practicality.

**Key words** lasers; nonlinear laser frequency conversion; deep ultraviolet laser; ultrafast laser; tunability