

DOI: 10.3969/j.issn.1007-5461.2023.04.005

深紫外飞秒激光脉宽测量

张艳琳^{1,2,5}, 游利兵^{1,3,5*}, 王宏伟¹, 王琪⁴,
胡泽雄^{1,2}, 范军^{1,2}, 方晓东^{1,2}

(1 中国科学院合肥物质科学研究院安徽光学精密机械研究所, 安徽省光子器件与材料重点实验室,
安徽 合肥 230031;
2 中国科学技术大学, 安徽 合肥 230026;
3 深圳技术大学新材料与新能源学院, 广东 深圳 518118;
4 合肥工业大学电子科学与应用物理学院, 安徽 合肥 230009;
5 深圳盛方科技有限公司, 广东 深圳 518173)

摘要: 为准确测量193 nm深紫外飞秒激光的脉冲宽度, 基于氟化钙的双光子荧光效应, 设计并搭建了用于紫外飞秒激光脉冲的脉宽测量系统。双光子荧光信号强度与入射激光光强的平方依赖关系证明了获得双光子荧光信号的可靠性。利用插入法进行了CCD探测系统的数值标定, 获得单像素对应的时间尺度为7.35 fs。单脉冲测量下, 得到193 nm深紫外飞秒激光的脉宽为476.1 fs, 与利用光谱法进行测量计算得到的结果基本吻合。

关键词: 激光技术; 脉宽测量; 深紫外飞秒激光; 双光子荧光

中图分类号: TN247 文献标识码: A 文章编号: 1007-5461(2023)04-00469-07

Pulse duration measurement of deep ultraviolet femtosecond laser

ZHANG Yanlin^{1,2,5}, YOU Libing^{1,3,5*}, WANG Hongwei¹, WANG Qi⁴,
HU Zhexiong^{1,2}, FAN Jun^{1,2}, FANG Xiaodong^{1,2}

(1 Anhui Provincial Key Laboratory of Photonic Devices and Materials, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, HFIPS,
Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China;
2 University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China;
3 College of New Materials and New Energies, Shenzhen Technology University, Shenzhen 518118, China;
4 School of Electronic and Applied Physics, Hefei University of Technology, Hefei 230009, China;
5 Shenzhen Shengfang Technology Limited Company, Shenzhen 518173, China)

Abstract: In order to accurately measure the pulse width of 193 nm deep ultraviolet femtosecond laser, a pulse width measurement system was designed and built based on the two-photon fluorescence effect of calcium fluoride. The square dependent relationship of the two-photon fluorescence signal on incident laser intensity confirms the reliability of the two-photon fluorescence signal. The numerical calibration of

基金项目: 国家自然科学基金(41627803), 安徽省重点研究和开发计划项目(1804a0802219), 深圳市科技计划项目(KQTD20170331115422184), 中国科学院核心关键技术攻关项目(ZKYXG-2018-04)

作者简介: 张艳琳(1996-), 女, 山西忻州人, 研究生, 主要从事紫外超短脉冲参量测量和放大方面的研究。E-mail: yanlinz@mail.ustc.edu.cn

导师简介: 方晓东(1963-), 博士, 研究员, 博士生导师, 主要从事功能薄膜材料、器件, 以及激光技术相关的研究。E-mail: xdfang@aiofm.ac.cn

收稿日期: 2021-03-15; **修改日期:** 2021-05-07

*通信作者。Email: youlibing@sztu.edu.cn

the CCD detection system is carried out using insertion method, and the obtained time scale corresponding to a single pixel is 7.35 fs. In single-shot pulse measurement, the pulse width of 193 nm deep ultraviolet femtosecond laser is measured to be 476.1 fs, which is basically consistent with the result obtained through measurement and calculation using spectroscopy.

Key words: laser technique; pulse width measurement; deep ultraviolet femtosecond laser; two-photon fluorescence

0 引言

飞秒激光由于其高时间分辨率和高峰值功率密度,而被广泛应用于精密测距、生命科学、光通信、大气监测等^[1-4]领域。对于飞秒激光而言,脉冲宽度是决定激光时间特性的重要参量。为了更好地发挥飞秒激光在各领域的作用,准确获得飞秒激光脉宽信息具有重要价值。目前国内外常用的飞秒脉冲测量技术主要有自相关法、频率分辨光学开关法(Frog)、光谱位相相干电场重构法(Spider)^[5-7],这些方法通常依赖于非线性晶体的厚度和相位匹配参数^[6]。随着紫外超快技术的不断进步,紫外飞秒激光在激光光谱、超快动力学、原子探测、强场物理^[8-10]等领域的应用中表现出巨大优势,准确测量紫外飞秒激光的脉冲宽度也变得十分重要。由于在紫外波段缺乏合适的非线性晶体,传统的脉宽测量技术无法直接用于紫外飞秒激光的测量,为此,新的测量技术被开发出来。20世纪90年代,Omenetto等^[11]、Li等^[12]利用介质的双光子荧光效应进行了紫外激光脉冲宽度的测量,准确获得了所测激光的脉宽信息。2010年Dai^[13]采用光丝中的双光子荧光效应和互相关两种方法测量了266 nm激光脉冲的脉宽。基于稀有气体的多光子电离技术也可用于紫外飞秒激光的脉宽测量^[14]。Beutler等^[15]利用Xe的多光子电离,在氙气填充的飞行时间质谱仪中进行了互相关测量,获得了160 nm激光的脉宽信息。2017年Xu等^[16]基于简并四波混频瞬态光栅衍射法,建立波谱适用范围为248~400 nm的紫外单次自相关仪。因此有互相关、多光子电离法、双光子荧光法等多种测量技术可用于紫外飞秒激光脉宽的测量。其中,虽然双光子荧光法无法获得待测激光的相位信息,但其具有装置简单、无需相位匹配、可单次单脉冲测量的优点。

本文基于双光子荧光法,利用氟化钙的双光子荧光效应,设计并搭建了深紫外飞秒激光脉宽测量系统。通过CCD实现双光子荧光信号采集,利用Matlab对荧光数据进行处理和拟合,实现193 nm深紫外飞秒激光脉冲宽度的快速测量。

1 测量原理

双光子荧光法是将待测激光分为两束等光强的激光脉冲,两光束反向传播到非线性介质中,非线性介质吸收两个光子后辐射出荧光,通过分析荧光分布可得到待测脉冲的脉宽信息。因此非线性介质的带隙值与入射激光光子能量应当满足: $h\nu < E_g < 2h\nu$ 。

假设两束反向传播光束的电场分别表示为^[17]

$$E_1(t, z) = A_1 \left(t + \frac{nz}{c} \right) \exp[-i(\omega_1 t - k_1 z)] \quad , \quad (1)$$

$$E_2(t, z) = A_2 \left(t - \frac{nz}{c} \right) \exp[-i(\omega_2 t + k_2 z)] \quad , \quad (2)$$

式中: A_1 和 A_2 分别是两光束的振幅分布; ω_1 和 ω_2 分别是两光束的圆频率; k_1 和 k_2 分别是两光束的波数。双光子荧光的产生是一个非线性过程, 产生的双光子荧光强度 $I(z)$ 与入射激光脉冲光强的平方成正比, 所以荧光光强为

$$I(z) \propto \int |E_1(t, z) + E_2(t, z)|^2 dt \quad (3)$$

两束光脉冲相同且不考虑位相时, 荧光强度 $I(z)$ 正比于自相关函数 $G^2(\tau)$, $G^2(\tau)$ 可以表示为

$$G^2(\tau) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \{I(t-\tau)I(t)\} dt}{\int_{-\infty}^{\infty} \{I^2(t)\} dt} \quad (4)$$

式中 $\tau = 2nz/c$ 为延迟时间。当 $\tau = 0$ 时即两光束完全重合, 此时获得的荧光信号最强, 即

$$G^2(\tau) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \{I^2(t)\} dt}{\int_{-\infty}^{\infty} \{I^2(t)\} dt} = 1 \quad (5)$$

当两束光强完全不重合时, 观察不到自相关信号即 $G^2(\tau) = 0$ 。因此, 通过改变延时进行多次测量或单脉冲测量均可以实现待测脉冲的脉宽测量。

采用双光子荧光自相关法来测量脉冲宽度时, 需要先假设待测脉冲的波形, 如高斯型、双曲正割型等。待测飞秒激光脉冲的脉宽 $\Delta\tau$ 与测得的双光子荧光信号的半高宽度 $\Delta\tau_p$ [$G^2(\tau)$ 宽度] 的关系为 $\Delta\tau_p = k\Delta\tau$, 其中 k 是反卷积因子, 对于高斯脉冲 k 为 1.414, 对于双曲正割型脉冲 k 为 1.543。

2 实验系统的设计与搭建

当激光波长为 193 nm 时, 双光子能量为 12.8 eV, 常用的深紫外材料氟化镁 (MgF_2 , 10.8 eV)、氟化钙 (CaF_2 , 10.0 eV)、紫外级融石英 (JGS1, 9.0 eV)^[18] 均满足双光子吸收的条件, 其中 CaF_2 、 MgF_2 的带隙值更接近入射光的双光子能量。当入射波长为 193 nm 时, 相较于 MgF_2 、 CaF_2 的双光子吸收系数更高^[19], 因此从带隙宽度和双光子吸收两方面综合考虑, 本实验选用 CaF_2 作为双光子荧光介质。

在传统双光子荧光法三角测量装置的基础上, 设计了本次实验测量光路, 如图 1 所示。待测光源是中心波长为 193 nm, 重复频率为 20 Hz 的固体飞秒激光, 该系统前端是以掺钛蓝宝石飞秒激光为种子源的放大系统, 之后经频率转换模块获得深紫外飞秒激光的输出。入射飞秒激光经反射镜 M1 反射后通过二分之一波片 (WP) 和分束片 (BS) 分为两束等光强的激光脉冲。其中一束光脉冲经反射镜 M2 反射、聚焦透镜 L1 聚焦之后入射到 CaF_2 内, 另外一束激光经 M3 反射、L2 聚焦之后同样入射到 CaF_2 中。 CaF_2 被加工为侧面抛光的方形放置在平移台上, 抛光面朝向 CCD 方向, 以便 CCD 探测荧光。该平移台行程为 30 mm, 重复定位精度 5 μm 。高精度位移台可使非线性介质精确放置在两束激光脉冲延时为零的位置。当两束激光在氟化钙介质中重合时产生双光子荧光, 荧光经过变倍镜头放大之后被 CCD 接收。变倍镜头系统的放大倍率为 2.8 \times ~18 \times , 本实验中镜头的放大倍数设置为 6 \times 。通过 CCD 采集到荧光信号之后, 利用 Matlab 对数据进行分析、拟合及换算之后便可得到待测光源的脉宽信息。

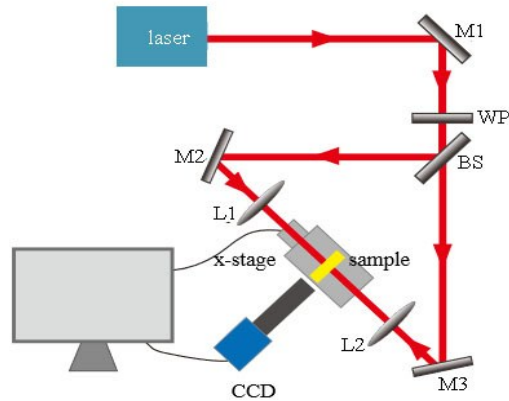


图1 脉宽测量系统

Fig. 1 System of pulse width measurement

3 实验结果与分析

3.1 非线性介质吸收特性测量

基于双光子荧光法测量紫外飞秒激光脉宽, 主要分为荧光信号获取、数值标定、数据拟合以及脉宽计算。通过调节使两束光在氟化钙中完全重合, 调整 CCD 成像系统的工作距离使其对荧光精确成像。CaF₂ 的双光子荧光较强, 易于 CCD 采集, 且荧光强度依赖于入射激光光强。在不同曝光时间下测量荧光强度与入射光强之间的关系, 如图 2 所示。可以看出荧光强度与入射激光光强的平方成正比, 表明所采集荧光信号为非线性介质产生的双光子荧光。

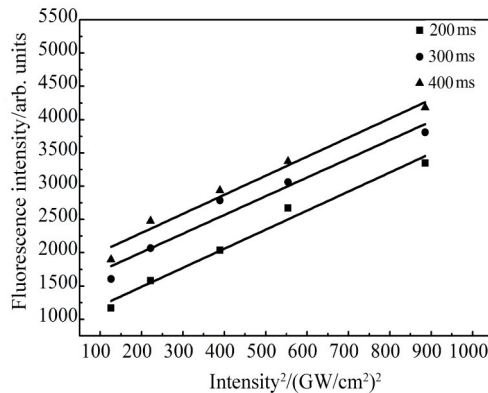


图2 荧光强度与入射激光强度的依赖关系

Fig. 2 Dependence of fluorescence intensity on laser irradiance

3.2 测量结果的处理

通过 Matlab 处理 CCD 采集的荧光图像, 可以得到双光子荧光在空间上的分布曲线即自相关曲线从而计算得到激光脉宽。为了获得激光脉宽的具体数值, 首先需要对 CCD 探测系统进行数值标定。在双光子荧光测量系统的一臂中, 插入厚度 l 为 2 mm 的紫外融石英 JGS1 ($n_1=1.561$), 即相当于在一侧光路中引入时间延时 $t = [(n_1 - n)l]/c$ 。此时 CCD 采集到的荧光图像发生位移, 通过 Matlab 处理可以得到荧光信号在 CCD 上移动的像素个数 N , 利用 t 除以像素移动个数 N 便可得到单个像素对应的时间尺度 T 。如图 3 所示, 分别在测量系

统的两臂插入 JGS1 之后荧光信号发生明显位移。Matlab 对三张荧光图像进行灰度处理, 并对每列像素值取平均得到信号的强度数值, 提取荧光强度峰值对应的横坐标值。经以上处理可得相对于零延时荧光信号(b), 引入延时后荧光信号平均移动了 509 个像素。用引入的延迟时间除以位移量 509, 得到单个像素对应的时间尺度为 7.35 fs。

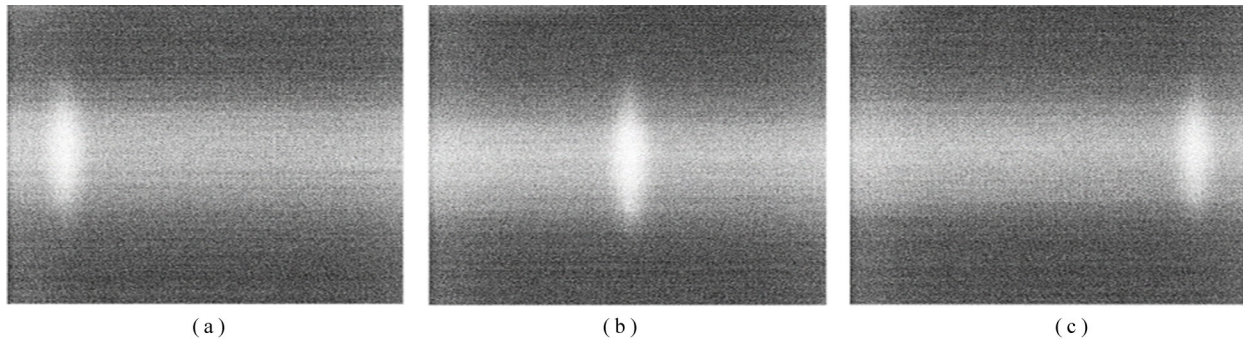


图3 插入JGS1进行自标定。(a) 在反射光路插入JGS1后的荧光信号; (b) 标定之前获得的荧光信号; (c) 在透射光路插入JGS1后的荧光信号

Fig. 3 Calibration by inserting JGS1. (a) Fluorescence signal when the JGS1 was introduced into reflected arm; (b) Fluorescence signal before calibration; (c) Fluorescence signal when JGS1 was introduced into transmission arm

数值标定完成之后, 便可进行自相关曲线的拟合和脉宽计算。入射到非线性介质上的单脉冲能量为 17.2 μJ , CCD 曝光时间为 50 ms, 无延时条件下得到双光子荧光 (TPF) 的空间分布如图 4 所示。其中待测脉冲的波形为高斯型(Gauss fitting), 则反卷积因子 k 为 1.414。拟合得到自相关曲线的半高宽 (FWHM) 为 91.6 pixels, 对应时间宽度则为 673.26 fs, 根据 $\Delta\tau_p = k\Delta\tau$ 计算得到待测 193 nm 飞秒激光的脉宽为 476.1 fs。

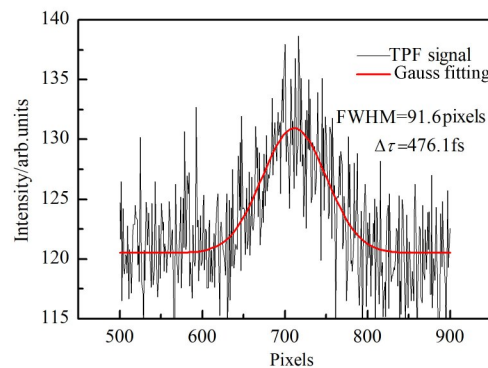


图4 单脉冲荧光信号强度分布图

Fig. 4 Single-shot fluorescence traces

3.3 测量结果的可靠性分析

在超快光学中, 激光脉冲的时间特性和光谱特性通过傅里叶变换而彼此相关。为了验证双光子荧光法测量结果的可靠性, 利用光谱法^[20]测量计算了 193 nm 深紫外飞秒激光的脉宽。首先利用光谱仪测得待测光源的谱线宽度, 后根据谱线的线型分布, 计算得到脉冲宽度。如图 5 所示, 待测光源的中心波长为 193.37 nm, 光谱仪测得的谱线宽度为 0.12 nm, 谱线形状为高斯型。由傅里叶变换可知, 对于高斯型脉冲, 最小时间带宽积为

$$\Delta\tau\Delta\nu=0.44 \quad , \quad (6)$$

$$\Delta\nu=\frac{c\Delta\lambda}{\lambda^2} \quad . \quad (7)$$

需要注意在利用光谱仪进行谱线宽度测量时,扣除仪器展宽才能得到更加准确的谱线宽度。本实验使用 Andor 公司的 Shamrock 500i 光谱仪,光栅刻线为 2400 l/mm 时,分辨率可达 0.0215 nm。一般认为光谱仪引入的仪器展宽低于分辨率,因此仪器展宽小于 0.0215 nm。利用以下简化公式计算光谱的实际线宽

$$\Delta\lambda=\Delta\lambda_{\text{measured}}-\Delta\lambda_{\text{instrument}} \quad . \quad (8)$$

由(6)~(8)式,可计算出 193 nm 待测光源的傅里叶变换极限脉宽范围为 457.0~556.8 fs。实验测得 193 nm 飞秒激光的脉宽为 476.1 fs,比较两者的结果可知,双光子荧光法测得的脉宽基本与光谱法计算得到的脉宽结果一致。

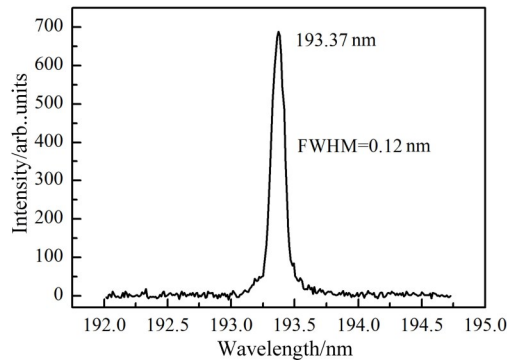


图5 193 nm 激光光谱图

Fig. 5 Spectrum of 193 nm

4 结 论

为了实现深紫外飞秒激光的脉宽测量,基于非线性介质氟化钙的双光子荧光效应,设计并搭建了双光子荧光脉宽测量系统。通过对荧光强度与入射激光强度依赖关系的测量,验证了其荧光信号确为非线性介质的双光子荧光。在单脉冲测量条件下,成功测得 193 nm 深紫外飞秒激光的脉宽为 476.1 fs。该实验测量结果基本位于光谱法计算得到的脉宽范围之内。双光子荧光测量系统的成功搭建,脉冲宽度的快速测量,为研究紫外飞秒激光时域特性提供了可靠的测量手段,为后续进行紫外超短脉冲的准分子激光放大特性的研究奠定了基础,也有利于推动紫外飞秒激光在相关领域的应用。

参考文献:

- [1] Garcia-Lechuga M, Haahr-Lillevang L, Siegel J, *et al.* Simultaneous time-space resolved reflectivity and interferometric measurements of dielectrics excited with femtosecond laser pulses [J]. *Physical Review B*, 2017, 95(21): 214114.
- [2] Barbatti M, Aquino A J A, Szymczak J J, *et al.* Relaxation mechanisms of UV-photoexcited DNA and RNA nucleobases [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2010, 107(50): 21453-21458.
- [3] Kowalski M, Życzkowski M. Data encryption of optical fibre communication using pseudo-random spatial light modulation [J]. *Opto-Electronics Review*, 2016, 24(2): 75-81.

- [4] Teng H, Lu X, Shen Z W, *et al.* Properties of long plasma-channel generated by TW femtosecond laser in natural environmental air [J]. *Chinese Journal of Quantum Electronics*, 2020, 37(5): 513-523.
滕浩, 鲁欣, 沈忠伟, 等. 野外环境下太瓦飞秒激光等离子体通道特性研究 [J]. 量子电子学报, 2020, 37(5): 513-523.
- [5] Singh M, Kaur M, Sharma R. Temporal profile measurements of ultrafast pulsed laser systems [J]. *Materials Today: Proceedings*, 2020, 26(3): 3337-3340.
- [6] Wu L, Yin W H, Yu B, *et al.* Research on femto-second laser pulse width and pulse waveform measurement technology [J]. *Journal of Applied Optics*, 2019, 40(2): 291-299.
吴磊, 阴万宏, 俞兵, 等. 飞秒激光脉冲宽度和脉冲波形测试技术 [J]. 应用光学, 2019, 40(2): 291-299.
- [7] Cai Y, Chen Z K, Zeng X K, *et al.* The development of the temporal measurements for ultrashort laser pulses [J]. *Applied Sciences*, 2020, 10(21): 7401.
- [8] d'Abzac F X, Noiriél C, Marquet A, *et al.* Comparison of 1030 nm and 257 nm wavelengths for U-Pb zircon dating by femtosecond laser ablation-inductively coupled plasma mass spectrometry with support of 3D crater imaging [J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2020, 168: 105863.
- [9] Wei Z R, Tian L, Li J L, *et al.* Tracking ultrafast bond dissociation dynamics at 0.1 Å resolution by femtosecond extreme ultraviolet absorption spectroscopy [J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2018, 9(19): 5742-5747.
- [10] Hono K, Ohkubo T, Chen Y M, *et al.* Broadening the applications of the atom probe technique by ultraviolet femtosecond laser [J]. *Ultramicroscopy*, 2011, 111(6): 576-583.
- [11] Omenetto F G, Schroeder W A, Boyer K, *et al.* Measurement of 160-fs, 248-nm pulses by two-photon fluorescence in fused-silica crystals [J]. *Applied Optics*, 1997, 36(15): 3421-3424.
- [12] Li Y M, Fedosejevs R. Visible single-shot autocorrelator in BaF₂ for subpicosecond KrF laser pulses [J]. *Applied Optics*, 1996, 35(15): 2583-2586.
- [13] Dai X M. *Study on the Measurement of UV Femtosecond Laser Pulse Duration* [D]. Shanghai: East China Normal University, 2010.
戴小民. 紫外飞秒激光脉冲宽度测量的研究 [D]. 上海: 华东师范大学, 2010.
- [14] Kaku M, Nagaya W, Zushi H, *et al.* Autocorrelation of femtosecond VUV pulses using multiphoton ionization [C]. *SPIE Conference on High Energy/Average Power Lasers and Intense Beam Applications V*, San Francisco, USA, SPIE, 2011.
- [15] Beutler M, Ghotbi M, Noack F, *et al.* Generation of sub-50-fs vacuum ultraviolet pulses by four-wave mixing in argon [J]. *Optics Letters*, 2010, 35(9): 1491-1493.
- [16] Xu Y S, Zhang J, Zhang H F, *et al.* Study on ultraviolet single shot autocorrelator based on transient grating diffraction [J]. *Atomic Energy Science and Technology*, 2017, 51(3): 567-571.
徐永生, 张骥, 张海峰, 等. 瞬态光栅衍射法紫外单次自相关仪的研究 [J]. 原子能科学技术, 2017, 51(3): 567-571.
- [17] Chen X, You L B, Yin G Y, *et al.* Pulse width measurement of UV femtosecond laser [J]. *Laser Technology*, 2019, 43(2): 205-211.
陈星, 游利兵, 尹广玥, 等. 紫外飞秒激光的脉宽测量方法 [J]. 激光技术, 2019, 43(2): 205-211.
- [18] Patankar S, Yang S T, Moody J D, *et al.* Two-photon absorption measurements of deep UV transmissible materials at 213 nm [J]. *Applied Optics*, 2017, 56(30): 8309-8312.
- [19] Kittelmann O, Ringling J. Intensity-dependent transmission properties of window materials at 193-nm irradiation [J]. *Optics Letters*, 1994, 19(24): 2053-2055.
- [20] Dong G Y, Guo K M, Gao X. Research on femtosecond pulse width measurement by spectroscopy [J]. *Journal of Changchun University of Science and Technology (Natural Science Edition)*, 2010, 33(1): 39-40, 25.
董光焰, 郭凯敏, 高勋. 利用光谱法测量飞秒激光脉冲宽度研究 [J]. 长春理工大学学报(自然科学版), 2010, 33(1): 39-40, 25.