

文章编号: 1001-3806(2019)02-0205-07

紫外飞秒激光的脉宽测量方法

陈星^{1,2}, 游利兵^{1*}, 尹广玥^{1,2}, 方晓东^{1,2}

(1. 中国科学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, 合肥 230031; 2. 中国科学技术大学 科学岛分院, 合肥 230026)

摘要: 相对于近红外波段的飞秒激光脉冲, 紫外波段的飞秒脉冲由于具有单光子能量高、聚焦特性好、电离率高和成丝阈值低等优点, 在高功率密度光场的产生、等离子体光物理等领域有着越来越广阔的应用前景, 成为激光技术的研究热点。随着紫外飞秒激光技术的发展, 传统的脉宽测量方法不能满足需求。指出了紫外飞秒激光脉宽测量研究的主要进展, 讨论了目前可用于紫外飞秒激光脉宽的测量方法, 主要有双光子荧光测量法、互相关法、简并四波混频法、多光子电离法, 介绍了相关测量原理与特点。在此基础上, 对紫外飞秒激光脉宽测量技术研究前景进行了展望。

关键词: 激光技术; 紫外飞秒脉冲; 互相关法; 多光子电离法; 双光子荧光法; 脉宽测量

中图分类号: O434 **文献标志码:** A **doi:** 10.7510/jgjs.issn.1001-3806.2019.02.011

Pulse width measurement of UV femtosecond laser

CHEN Xing^{1,2}, YOU Libing¹, YIN Guangyue^{1,2}, FANG Xiaodong^{1,2}

(1. Anhui Province Key Laboratory of Photonic Devices and Materials, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China; 2. School of Science Island, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

Abstract: Compared with femtosecond laser pulses in the near-infrared region, femtosecond pulses in the ultraviolet region have the advantages of high single-photon energy, good focusing property, high ionization rate and low filament threshold value. It has broad application prospects in the production of high power density optical field and the field of plasma photophysics. Femtosecond pulses in the ultraviolet region have become a hot spot of laser technology. With the development of ultraviolet femtosecond laser technology, the traditional pulse width measurement method cannot meet the demand. The main advances in the study on pulse width measurement of ultraviolet femtosecond lasers are pointed out. The measurement methods currently available for ultraviolet (UV) femtosecond laser pulse width are discussed, mainly including two-photon fluorescence measurement, cross-correlation method, degenerate four-wave mixing method, multiphoton ionization method. The relevant measurement principles and characteristics are introduced. Based on the research, the research prospects of the ultraviolet femtosecond laser pulse width measurement technology are prospected.

Key words: laser technique; ultraviolet femtosecond pulse; cross correlation method; multi-photon ionization method; two-photon fluorescence method; pulse width measurement

引言

紫外飞秒激光是具有峰值功率高、成丝阈值低、电离率高、聚焦特性好等特点的光源, 故在光化学、光生物学等领域有应用潜力^[1-3]。例如, 在光纤诱导远程荧

光光谱技术中, 可采用波长为 267nm 的深紫外飞秒激光和 800nm 的红外飞秒激光进行双色场光纤诱导气体荧光, 提高该技术的灵敏度、信噪比和检测效率^[4]。再如, 采用紫外飞秒激光的拉丝可以提升激光诱导击穿光谱技术的准确性、测量精度、安全性以及可靠性, 降低探测限度, 从而有望实现远距离动态检测^[5]。

紫外飞秒激光可通过固体的非线性效应产生, 该方法通过使用非线性晶体, 对红外或可见光波段的飞秒脉冲进行一次或多次频率转换。偏硼酸钡 (β -BaB₂O₄, BBO) 晶体和三硼酸锂 (LiB₃O₅, LBO) 晶体都具有非线性系数大、光损伤阈值高、化学稳定好、易于

基金项目: 国家自然科学基金重大科研仪器研制资助项目(41627803)

作者简介: 陈星(1994-), 男, 硕士研究生, 主要从事激光参量测量方面的研究。

* 通讯联系人。E-mail: lbyou@aiofm.ac.cn

收稿日期: 2018-05-22; 收到修改稿日期: 2018-06-28

机械加工等优异性能,尤其在紫外波段透光范围特别宽。故常用于紫外飞秒脉冲的产生^[6-8]。ZHOU 等人^[9]使用中心波长为 800nm 的钛宝石激光器作为光源,其脉宽为 70fs,以 BBO 晶体作为非线性介质,先倍频产生 400nm 的光脉冲,再通过 400nm 的倍频光与 800nm 的基频光的和频,产生了 266nm 紫外飞秒脉冲。由于受到晶体传输波长的限制,目前该方法仅能产生 200nm 以上的紫外飞秒脉冲。氟硼酸铍钾 (KBe₂BO₃F₂, KBBF) 晶体是新型的固体非线性介质,紫外透过范围约为 152nm ~ 3660nm,利用该晶体可以获得 200nm 的深紫外飞秒脉冲^[10],由于还没有批量生产,故该晶体在紫外飞秒脉冲的产生中并未得到推广。

脉宽的精确测量对紫外飞秒激光技术的发展有重要意义,故成为该领域的研究重点。现有的方法,如相关法、自参考光谱位相相干电场重建法、频率分辨光学开关法等,主要用于红外或可见光波段的超短脉宽测量^[11-14],由于缺少合适的非线性晶体,上述方法不适用于紫外飞秒激光。目前,适用于紫外飞秒脉冲的脉宽测量方法主要有改进后的双光子荧光法、互相关法、简并四波混频法、多光子电离法等,本文中対以上技术进行了重点介绍。

1 双光子荧光法

图 1 所示为双光子诱导荧光过程的能级跃迁示意图。在强光的激发下,基态荧光介质通过虚拟能级同时吸收两个低频光子后被激发至激发态,这个过程即为双光子吸收,激发态荧光介质再辐射出的高频光子即为双光子诱导的荧光。由于具有选择激发性等优点,故双光子荧光在生物组织显微成像等方面有广泛应用^[15-16],除此之外,可以利用双光子荧光现象对紫外飞秒激光的脉宽进行测量。

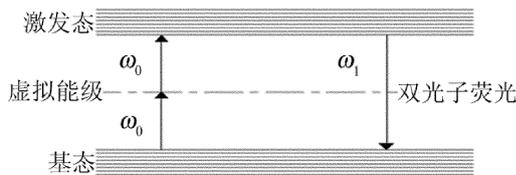


图 1 双光子吸收模型图

假设两束相反传播的紫外飞秒激光脉冲分别表示为:

$$E_1(t, z) = A_1(t + zn/c) \exp[-i(\omega_1 t - k_1 z)] \quad (1)$$

$$E_2(t, z) = A_2(t - zn/c) \exp[-i(\omega_2 t + k_2 z)] \quad (2)$$

式中, E_1 和 E_2 分别为光束 1、光束 2 的光强分布; A_1 和 A_2 分别为光束 1、光束 2 的振幅在空间的分布; n 为

光束 1、光束 2 在介质中的折射率; c 为光速; ω_1 和 ω_2 分别为光束 1、光束 2 的中心角频率; k_1 和 k_2 分别为光束 1、光束 2 的波数; t 为光束 1、光束 2 在空间的传播时间; z 为光束 1、光束 2 的在空间中的位置。因为双光子荧光的强度正比于激发光强度的平方,所以使用光探测器探测到的荧光强度为:

$$I(z) \propto \int |E_1(t, z) + E_2(t, z)|^4 dt \quad (3)$$

式中, $I(z)$ 为荧光在空间的强度分布。不考虑脉冲初始相位,且分别令 $A = A_1 = A_2, \omega_1 = \omega_2, k = k_1 = k_2$, 则:

$$I(z) \propto \int A^4(t) dt + 2 \cos(2kz) \times \int A^3(t - zn/c) A(t + zn/c) dt + \cos(4kz) \int A^2(t - zn/c) A^2(t + zn/c) dt \quad (4)$$

当 $z=0$ 时,两束反方向传播的紫外飞秒激光完全重合, $I(z) \propto 4 \int A^4(t) dt$, 当 z 趋近于无穷时, $I(z) \propto \int A^4(t) dt$ 。因此,通过对不同延迟下的飞秒脉冲诱导的双光子荧光强度,或对单个脉冲诱导的荧光强度的空间分布进行测量,即可计算出待测脉冲的宽度^[17]。

基于双光子荧光法的紫外飞秒激光脉宽测量实验装置如图 2 所示。待测紫外飞秒激光以 60° 的入射角通过分束镜后,被分为两束强度相等的光脉冲;再经反射镜片,两束激光以相反的方向共线传播;采用相同的会聚透镜对两束光聚焦,以提高荧光的激发强度,此处的会聚透镜应关于荧光介质对称设置,通过对会聚光斑的尺寸调节来控制激发光强;采用电荷耦合元件 (charge-coupled device, CCD) 相机与成像镜头对双光子荧光图像进行捕捉。为了提高紫外飞秒激光的能量传递效率,分束镜、会聚透镜等光学器件可使用氟化钙、氟化镁晶体及紫外级熔融石英来制作,反射镜需要保证对紫外飞秒脉冲的反射率。此外,荧光介质需根据待测光源的波长来选择,一般 CCD 相机的波长响应

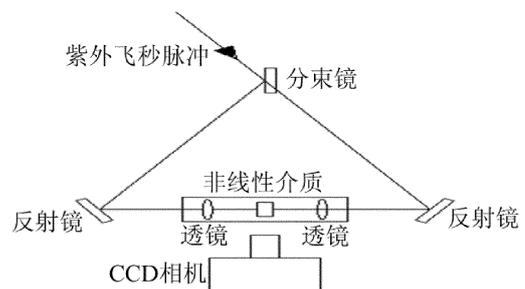


图 2 双光子荧光法测量脉冲宽度装置图

范围应覆盖荧光波段。

1997 年, OMENETTO 等人^[18] 利用熔融二氧化硅晶体的双光子诱导色心形成的荧光制得单脉冲自相关器, 并通过该自相关器成功地对波长为 248nm、脉宽为 160fs 的紫外飞秒脉冲进行了精确测量。通过对获得的数据进行拟合, 得到的单脉冲自相关曲线如图 3 所示。研制的单脉冲自相关器采用的探测器的像素尺寸为 2.4 μm 。

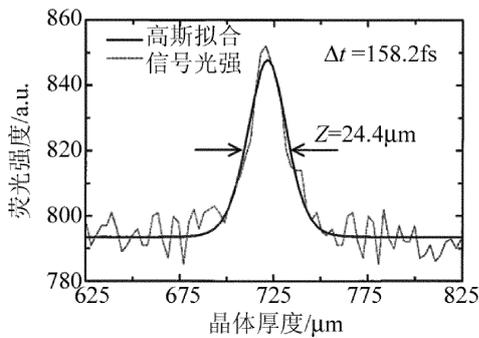


图 3 自相关曲线图

脉冲的时间宽度 Δt 为:

$$\Delta t = \frac{2nZ}{c} \quad (5)$$

式中, Z 为荧光强度分布的半峰全宽。利用(5)式将空间横坐标转换成时间坐标, 即可将荧光的空间信号变成光脉冲的时域信号。可得每个像素对应于 15fs。

1987 年, HUTCHINSON 等人^[19] 报道了利用 Xe_2 中的双光子荧光对亚皮秒 KrF 激光器的单个超短脉冲的持续时间进行测量, 成功测量了 248nm 飞秒脉冲宽度约为 350fs。相比真空紫外荧光, 可见光波段的荧光更具有研究价值。这种简单的技术可以应用于波长为 204nm ~ 306nm 的紫外飞秒脉宽测量。1991 年, DADAP 等人^[20] 证明了足够薄(约 250 μm)的单晶金刚石中能够产生足够强的双光子吸收现象, 并基于双光子荧光测量原理, 简要介绍了 0.18ps ~ 1.4ps 的脉冲宽度测量方法, 该方法不需要相位匹配, 并且可应用于波长为 220nm ~ 550nm 范围内的脉宽测量。1996 年, LI 等人^[21] 基于 BaF_2 中的双光子荧光法研制出单脉冲自相关器, 利用 BaF_2 发射紫外荧光, 成功用于测量 248nm 紫外飞秒脉冲, 脉宽为 850fs, 荧光强度也可用于测量 BaF_2 双光子吸收系数。

基于双光子荧光法测量脉宽装置简单, 测量过程不需要相位匹配, 同时产生的双光子荧光波段远离激发光波段, 避免了激发光对荧光强度探测的影响。但是当两束光脉冲不完全重叠时会产生背景光, 理想情况下, 最大荧光强度和两束光脉冲完全不重叠时产生

的荧光强度之比为 3:1, 可以通过适当提高入射光脉冲的能量提高信号光和背景光强度的对比度保证测量精度。双光子荧光测量法一般可用于 200nm 以上的紫外飞秒脉宽测量。

目前本实验室正在研制脉宽约 100fs、中心波长为 193nm 的紫外飞秒光源。通过对实验方案的可行性分析, 本课题组拟采用双光子荧光法测量上述光源脉宽, 相关实验细节与数据处理有待进一步分析。

2 互相关法

相关法基于迈克尔逊干涉仪的结构, 通过记录两束光脉冲入射至晶体中产生的相关信号, 来测量入射光脉冲的时域宽度^[22]。自相关法中, 入射至介质中的两束脉冲完全相同, 当入射至介质中为两束不同的脉冲, 此时该测量方法可称为互相关法。假设基频光强度为 $I_1(t)$, 倍频光强度为 $I_2(t)$, 则互相关函数可表示为^[23]:

$$I(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_1(t - \tau) I_2(t) dt \quad (6)$$

式中, τ 为两束光脉冲之间的延迟时间。

当脉冲的基本形状和宽度已知时, 该方法可以用来研究二次谐波场。1988 年, EDELSTEIN 等人^[24] 在第 2 块倍频晶体中将 630nm 脉冲与其在第 1 块倍频晶体中倍频得到的 315nm 紫外脉冲混频。通过观察产生的 200nm 紫外脉冲强度研究 630nm 脉冲和 315nm 脉冲的互相关过程。其中 630nm 脉冲宽度为已知, 混频信号的强度可以通过实验测量。

图 4 所示为互相关测量法装置图。其中 TSA(Ti:sapphire laser)为飞秒掺钛宝石激光器, BBO 4 是用来产生混频激光的晶体。入射脉冲经过级联晶体组产生待测脉冲, 采用高反镜将待测脉冲与基频光分开, 基频光通过延时装置, 并引入时间延迟。当两束脉冲会聚至非线性晶体上, 产生混频信号, 改变延迟即可得到混频信号强度随延迟变化的曲线。

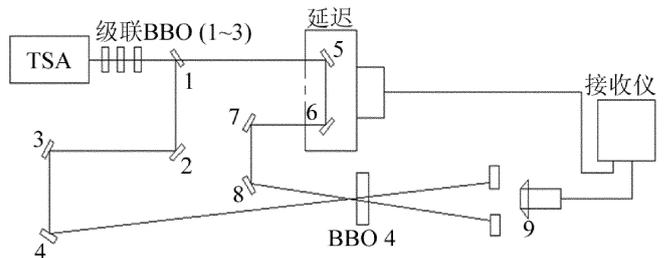


图 4 互相关测量法装置图

利用互相关法测量脉宽时, 需对测量系统定标。即当两束光脉冲准同步时, 记录初始峰值位置 x_1 , 然

后选择一光路引入延迟,可通过沿垂直光束传播方向插入标准片,记录峰值位置 x_0 。峰值位置相对移动量 $L = x_0 - x_1$,如图5所示。

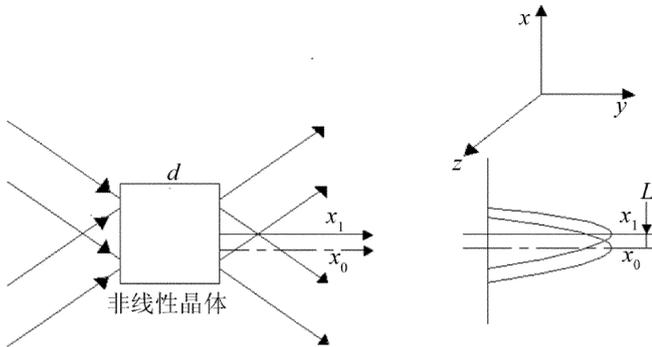


图5 互相关峰值位置原理示意图

因此,峰值位置每移动一个单位长度两光束的延时量为:

$$r = \frac{(n-1) \times d}{c \times L} \quad (7)$$

式中, d 为标准片厚度。

2011年,DAI等人^[25]基于上述测量装置,先将810nm光脉冲通过晶体组产生266nm紫外飞秒脉冲,再将810nm基频光和266nm紫外飞秒脉冲混频产生200nm光脉冲,得到混频信号随延迟时间的强度变化曲线,再通过定标,计算出266nm紫外飞秒脉冲宽约为230fs。通过与双光子荧光法测量结果对比,数据基本接近。

虽然互相关法可以成功测量出紫外飞秒脉冲宽度,由于作用的是两束不同的光脉冲,因此在定标的过程会存在一定的误差,导致实验结果的可重复性较低,同时峰值的移动量与两束光的夹角、延迟时间有关,因此,在测量脉宽的过程,需选择合适的晶体、夹角,准确控制延迟时间以减小误差。

3 简并四波混频法

四波混频指4束不同频率的光脉冲在非线性介质中混频过程,在四波混频中光子满足能量和动量守恒。当4束光脉冲的频率全都相等时即为简并四波混频^[26]。

简并四波混频基于3阶非线性极化效应,在介质中,当两束抽运光在空间和时间上重合时,会形成光栅。若入射脉冲为3束抽运光,则入射至非线性介质中的两束脉冲可诱导出折射率呈周期性变化的瞬态光栅。当第3束光入射至介质中,则被光栅衍射形成信号光^[27]。

在非线性介质中,3束抽运光和信号光的波矢按照正方形的4个顶点排列,且满足相位匹配条件:

$$\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3 \quad (8)$$

$$k_4 = k_1 - k_2 - k_3 \quad (9)$$

如图6所示,其中 k_1, k_2, k_3, k_4 为各光束的波矢, $\omega_1, \omega_2, \omega_3, \omega_4$ 为各光束的中心角频率。

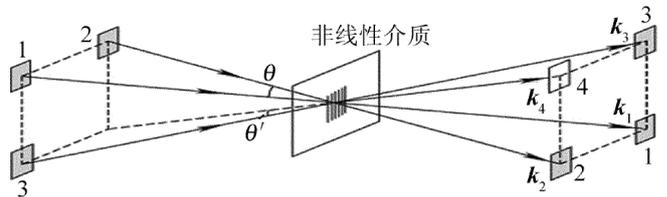


图6 瞬态光栅衍射的波矢结构

若引入延迟,则信号光的强度随延迟时间发生变化,可通过CCD相机获得自相关曲线。假定脉冲波形,根据测得的自相关曲线宽度反推出脉冲宽度。

设3束光脉冲强度分别为 $I_1(t), I_2(t), I_3(t)$, 信号光强度为 $I_4(\tau)$:

$$I_4(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I_1(t) I_2(t - \tau) I_3(t) dt \quad (10)$$

式中, τ 为延迟时间。

假设脉冲波形为高斯波形, $I(t)$ 的半峰全宽为 Δt 。

$$I(t) = I(0) \exp\left[-4 \ln 2 \left(\frac{t}{\Delta t}\right)^2\right] \quad (11)$$

当3束光光强相等时,结合(1)式、(2)式可得:

$$I_4(\tau) = I_4(0) \exp\left[-\frac{8 \ln 2}{3} \left(\frac{\tau}{\Delta t}\right)^2\right] \quad (12)$$

从上式可以看出,极短的延迟时间 $\Delta \tau$ 可表示为:

$$\Delta \tau = \frac{\sqrt{6}}{2} \Delta t \quad (13)$$

即 $\Delta t = 0.816 \Delta \tau$, 故只需得到自相关曲线的宽度即可得到脉冲宽度。

基于上述原理,2016年,XU等人^[28]建立了如图7所示的紫外单次自相关测量装置。3束待测光束通过柱透镜聚焦在非线性介质,其中光束2通过延迟装置,当3束光的脉冲时间重叠时,获得自相关信号并成像到线阵CCD上,计算机处理获得的数据。将该仪器运

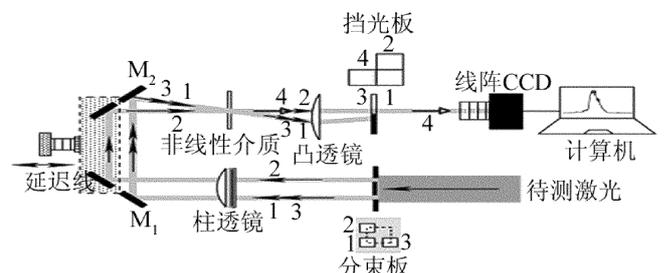


图7 紫外单次自相关测量装置

用到掺钛蓝宝石激光的倍频光(400nm)与三倍频光(266nm)的脉宽测量,获得如图 8 所示的测量结果。

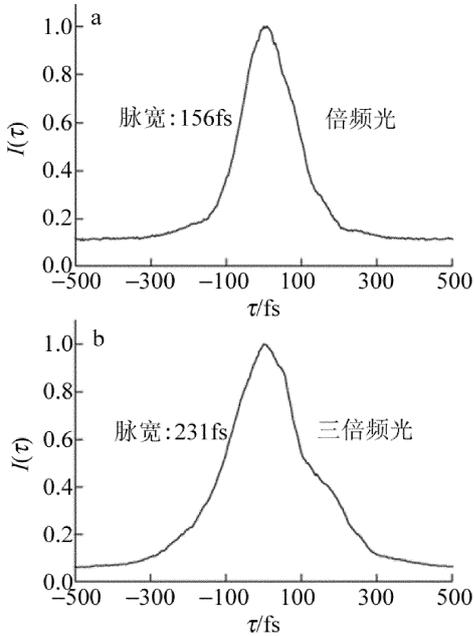


图 8 倍频光和三倍频光的自相关曲线图

将该仪器应用在测量 248nm KrF 准分子激光器的输出脉冲宽度,测量结果如图 9a 所示,脉宽为 500fs。为了验证测量的准确性,采用双光子荧光测量法,获得脉宽为 490fs,测量结果如图 9b 所示。

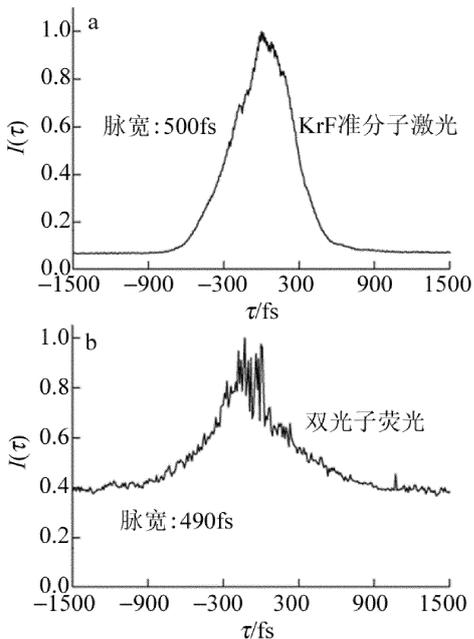


图 9 KrF 准分子激光和双光子荧光法自相关曲线

简并四波混频测量脉宽法具有准确性高、误差小等优点,由于非线性介质的限制,可适用于测量波长范围约为 248nm ~ 400nm 的紫外飞秒脉冲。测量装置实时显示结果,能够对脉宽进行单次测量,分辨脉宽的变化。

4 多光子电离

光与物质相互作用时,当光子的能量大于或等于原子电离能时就产生电离现象。根据物质发生电离时吸收光子数的数目可分为单光子电离、多光子电离。其中多光子电离包括双光子电离、三光子电离。

多光子电离过程可分为非共振多光子电离和共振多光子电离。非共振多光子电离指物质直接吸收两个或多个光子发生电离,共振多光子电离指物质先吸收两个或多个光子由基态跃迁至激发态,然后再吸收一定数目的光子发生电离^[29]。

多光子电离技术与飞行时间质谱技术结合使用,并可用于激光脉宽检测。由于飞行时间质谱技术具有检测快、分析范围广以及实验装置简单等优点,因此在生物学、医学等领域中得到了广泛的应用^[30-32]。2014 年,LIU 等人^[33]基于飞秒光电子影像技术,采用飞行时间质谱仪研究了碘甲烷分子在飞秒强激光场作用下的多光子电离动力学,运用飞秒强场多光子电离技术对多原子分子离子的振动量子态进行光学操控。

基于多光子电离原理,2010 年,IRIKURA 等人^[34]将该技术运用于脉宽测量,利用稀有气体 Ar 的多光子电离,通过飞行时间(time of flight, TOF)质谱仪成功测量了超短的红外脉冲宽度,获得脉宽为 213fs。该测量方法被验证合理可行后,也被应用于紫外飞秒激光脉宽测量。

基于多光子电离法测量紫外飞秒激光脉宽装置如图 10 所示。光脉冲以 45° 的入射角通过分束镜后,一束光作为测量探针,另一束光经过级联晶体组产生的三次谐波与经过延迟装置 1 的基频光共线聚焦至充满氙气的气室,并发生非线性效应产生待测紫外飞秒脉冲。脉宽测量过程发生在氙气填充的 TOF 质谱仪中,其中氙气的电离势是 12.15eV。通过延迟装置 2 的基频光与深紫外飞秒脉冲共线进入质谱仪的相互作用区域。产生的离子通过电场加速,由微通道板检测,测量

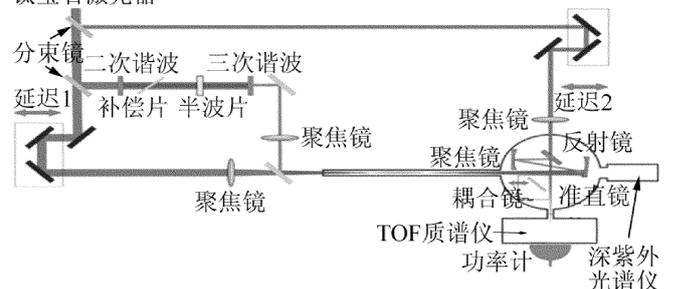


图 10 多光子电离法测量 160nm 紫外飞秒激光脉宽装置图

的归一化离子计数率作为互相关信号,根据测得的互相关曲线获得脉宽信息。

2010年, BEUTLER 等人^[35]基于上述实验装置成功测量了160nm紫外飞秒激光脉宽,其中160nm待测紫外飞秒脉冲由800nm基频光与产生的266nm三次谐波的非线性效应产生,基于多光子电离原理,在氙气填充的TOF质谱仪中采用800nm基频光对待测脉冲进行扫描。图11所示是根据实验中获得的互相关轨迹和高斯拟合后得到的曲线,测得的脉宽持续时间为49fs。

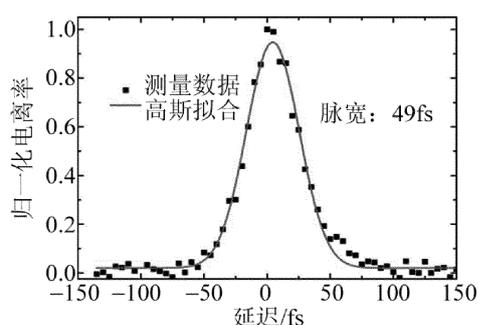


图11 800nm基频光和160nm信号光互相关曲线

相比其它脉宽测量方法,多光子电离测量法可以较为准确地测量200nm以下紫外飞秒脉冲宽度。但是由于测量过程在充满稀有气体的飞行时间质谱仪中进行,选择具有不同电离势的稀有气体可能会对测量结果产生一定的影响,同时气室气压的合理控制也是保证测量精度的重要因素。

5 结束语

介绍了紫外飞秒激光技术的发展现状,综述了多种针对紫外飞秒激光脉宽的测量方法。相较于红外波段及可见光的脉宽测量方法,由于缺乏适用于紫外波段的非线性晶体,紫外波段飞秒激光脉宽的测量依然存在难题。目前已经提出了一些针对紫外飞秒激光的脉宽测量方法,并且可以测量出紫外波段飞秒激光的脉宽信息,但是紫外飞秒激光脉宽测量技术还不够成熟。基于紫外飞秒激光的优良特性和在众多研究领域中发挥着重要作用,获取紫外飞秒激光脉宽信息是有需求的,随着紫外飞秒激光研究的发展,更多的脉宽测量方法将被发现,并用于更短波段的紫外飞秒激光脉宽测量。

参 考 文 献

[1] CHEN G F, WANG Q Sh, YU L J, *et al.* Experimental study of the generation of femtosecond ultraviolet laser pulse from the harmonics of Ti:sapphire[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2001, 30(1): 11-14 (in Chinese).

- [2] WANG Y D. The key technologies for generation of the ultraviolet femtosecond laser pulses[D]. Shanghai: East China Normal University, 2011: 3-5 (in Chinese).
- [3] ZHANG Y Sh. Study of the formation of a intense filamentation based on spatial modulation of interference effect of ultraviolet femtosecond pulses[D]. Shanghai: East China Normal University, 2011: 1-4 (in Chinese).
- [4] SHI L P. Deep-ultraviolet femtosecond laser filamentation and its application in ultrafast spectroscopy[D]. Shanghai: East China Normal University, 2014: 63-80 (in Chinese).
- [5] LIU J, GAO X, DUAN H H. Latest development of laser induced breakdown spectroscopy[J]. *Laser Journal*, 2012, 33(1): 7-10 (in Chinese).
- [6] ZHANG J Y, HUANG J Y, WANG H. Second-harmonic generation from regeneratively amplified femtosecond laser pulses in BBO and LBO crystals[J]. *Journal of the Optical Society of America*, 1998, B15(1): 200-209.
- [7] GOBERT O, MENNERAT G, MAKISMENKA R, *et al.* Efficient broadband 400nm noncollinear second-harmonic generation of chirped femtosecond laser pulses in BBO and LBO [J]. *Applied Optics*, 2014, 53(12): 2646-2655.
- [8] MENG X H, LIU H G, HUANG J H, *et al.* Tunable deep ultraviolet femtosecond sum frequency laser based on $Ba_{1-x}B_{2-y-z}O_4Si_xAl_yCa_z$ crystal[J]. *Acta Physica Sinica*, 2015, 64(16): 0164205 (in Chinese).
- [9] ZHOU H. Study on the generation of UV and VUV ultrashort pulses and the applications[D]. Shanghai: East China Normal University, 2014: 1-4 (in Chinese).
- [10] WANG D. Generation and applications of DVU and VUV femtosecond laser[D]. Shanghai: East China Normal University, 2016: 1-5 (in Chinese).
- [11] GAO Y. Measurement method of ultrashort pulse duration for femtosecond with autocorrelation[J]. *Journal of Xinzhou Teachers University*, 2007, 23(2): 24-25 (in Chinese).
- [12] WANG P, ZHAO H, ZHAO Y Y. Pulse width measurement of ultra-broad-bandwidth Ti:sapphire oscillator using SPIDER technique[J]. *Acta Physica Sinica*, 2007, 56(1): 224-228 (in Chinese).
- [13] TAFT G, RUNDQUIST A, MURNANE M M, *et al.* Ultrashort optical waveform measurements using frequency-resolved optical gating [J]. *Optics Letters*, 1995, 20(7): 743-745.
- [14] JIA Y D, ZHANG X Q. FROG pulse reconstruction and visualization measurement based on Matlab[J]. *Laser Journal*, 2017, 38(4): 25-27 (in Chinese).
- [15] LIU Q. Femtosecond laser two-photo fluorescence biological microscopy[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2014: 36-48 (in Chinese).
- [16] PARTHASARATHY A, AHN H Y, BELFIELD K D, *et al.* Two-photon excited fluorescence of a conjugated polyelectrolyte and its application in cell imaging[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2010, 2(10): 2744-2748.
- [17] LIU Y, LIU W W. Characteristic study of third harmonic generation induced by two-color-field femtosecond laser in air as a function of temporal delay [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2011, 38(5): 0502007 (in Chinese).
- [18] OMENETTO F G, SCHROEDER W A, BOYER K, *et al.* Measure-

- ment of 160fs, 248nm pulses by two-photon fluorescence in fused-silica crystals[J]. *Applied Optics*, 1997, 36(15): 3421-3424.
- [19] HUTCHINSON M H, MCINTYRE I A, GIBSON G N, *et al.* Measurement of 248nm, subpicosecond pulse durations by two-photon fluorescence of xenon excimers[J]. *Optics Letters*, 1987, 12(2): 102-104.
- [20] DADAP J I, FOCHT G B, REITZE D H. Two-photon absorption in diamond and its application to ultraviolet femtosecond pulse-width measurement[J]. *Optics Letters*, 1991, 16(7): 499-501.
- [21] LI Y M, FEDOSEJEVS R. Visible single-shot autocorrelator in BaF₂ for subpicosecond KrF laser pulses[J]. *Applied Optics*, 1996, 35(15): 2583-2586.
- [22] LI Ch. Research on the measurement of femtosecond pulse based on auto-correlation[D]. Wuhan: Huazhong University of Science and Technology, 2016: 11-20 (in Chinese).
- [23] BARONAVSKI A P, LADOUCEUR H D, SHAW J K. Analysis of cross correlation, phase velocity mismatch and group velocity mismatches in sum-frequency generation[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1993, 29(2): 580-589.
- [24] EDELSTEIN D C, WACHMAN E S, CHENG L K, *et al.* Femtosecond ultraviolet pulse generation in beta-BaB₂O₄[J]. *Applied Physics Letters*, 1988, 52(26): 2211-2213.
- [25] DAI X M. Study on the measurement of UV femtosecond laser pulse duration[D]. Shanghai: East China Normal University, 2010: 30-35 (in Chinese).
- [26] YIN X L. Study of degenerate four-wave mixing spectroscopy for measurement of isotopes and distortion correction of phase-conjugate[D]. Xi'an: Northwest University, 2016: 6-7 (in Chinese).
- [27] GAO B W, MENG J, FANG Y, *et al.* Transient-grating of hypochromin in photodynamic therapy based on three-dimensional degenerate four-wave mixing[J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, 27(6): 1071-1075 (in Chinese).
- [28] XU Y Sh, 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 (in Chinese).
- [29] CHENG Q Y. Study on multiphoton ionization via mass spectra of triethylamine[D]. Qufu: Qufu Normal University, 2012: 1045-1049 (in Chinese).
- [30] SUN L, BI Y F, ZHANG L, *et al.* Research progress on time-of-flight mass spectrometry and its application[J]. *Chinese Journal of Veterinary Drug*, 2009, 43(7): 37-40 (in Chinese).
- [31] CHEN X G, SHAO B, ZHANG H B, *et al.* Study on MALDI-TOF MS technology and its applications in HIV diagnosis[J]. *Chinese Journal of Frontier Health and Quarantine*, 2008, 31(5): 294-297 (in Chinese).
- [32] ZHAO B, SHEN X J. The development of TOFMS analysis technique[J]. *Modern Scientific Instruments*, 2006, 16(4): 30-33 (in Chinese).
- [33] LIU Y Zh, GERBER T, KNOPP G. Optical control of the vibrational excitation of the polyatomic ions via strong field multi-photon ionization[J]. *Acta Physica Sinica*, 2014, 63(24): 244208 (in Chinese).
- [34] IRIKURA M, ZUSHI H, NAGAYA W, *et al.* Autocorrelation measurement of subpicosecond pulses by using multiphoton ionization of rare gases [DB/OL]. [2018-06-27]. https://www.jstage.jst.go.jp/article/jceek/2010/0/2010_0_661/_pdf.
- [35] BEUTLER M, GHOTBI M, NOACK F, *et al.* Generation of sub-50fs vacuum ultraviolet pulses by four-wave mixing in argon[J]. *Optics Letters*, 2010, 35(9): 1491-1493.