

文章编号:1001-5078(2017)09-1113-06

· 激光器技术 ·

# 基于偏硼酸钡晶体高重复频率 266 nm 紫外激光器

卢一鑫<sup>1,2</sup>, 杨森林<sup>1,2</sup>, 赵小霞<sup>1,2</sup>, 张变莲<sup>1,2</sup>

(1. 陕西省表面工程与再制造重点实验室, 陕西 西安 710065;

2. 西安文理学院应用物理研究所, 陕西 西安 710065)

**摘要:**报道了利用基于掺镱光纤脉冲激光器 1064 nm 基频光通过偏硼酸钡晶体( $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, BBO)晶体四次谐波技术获得 266 nm 的紫外激光输出,利用双晶体空间走离补偿技术在重复频率为 80 MHz 平均输出功率为 2.9 W, 532 nm 到 266 nm 的转化效率为 36.5%。通过测量 266 nm 光强的变化发现双光子吸收效应导致了动态色心的形成,以及色心密度与双光子吸收系数随着晶体温度变化的规律,实验数据表明在晶体温度 200 °C 的双光子吸收效应比室温时低了 3.5 倍,提高了 266 nm 紫外激光的输出功率和稳定度。

**关键词:**紫外脉冲激光器;高重复频率;偏硼酸钡晶体;四次谐波效应;色心;双光子吸收效应

**中图分类号:**TN248.1 **文献标识码:**A **DOI:**10.3969/j.issn.1001-5078.2017.09.010

## High-repetition-rate 266nm ultraviolet laser based on $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> crystal

LU Yi-xin<sup>1,2</sup>, YANG Sen-lin<sup>1,2</sup>, ZHAO Xiao-xia<sup>1,2</sup>, ZHANG Bian-lian<sup>1,2</sup>

(1. Shaanxi province Key Laboratory of surface engineering and remanufacturing, Xi'an 710065, China;

2. Institute of Applied Physics, Xi'an university, Xi'an 710065, China)

**Abstract:** A high-repetition-rate, 266 nm picosecond ultraviolet (UV) laser output based on  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (BBO) is reported. The source based on fourth harmonic generation (FHG) of a 1064 nm compact Yb-fiber laser. Using a two-crystal spatial walk-off compensation scheme, average output power of 2.9 W is gotten when pulse repetition rate is 80 MHz, and FHG efficiency of 35% from the green to UV is obtained. The dynamic color center formation due to two-photon absorption in BBO is investigated by the change of light intensity at 266 nm, and the rule of two-photon absorption coefficients and the color center densities with crystal temperature change is obtained. The experimental results show that the two-photon absorption coefficient in BBO at 266 nm is 3.5 times lower at 200 °C compared to that at room temperature, which improves the output power and stability of ultraviolet laser at 266 nm.

**Key words:** ultraviolet (UV) pulsed laser; high-repetition-rate;  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (BBO); fourth harmonic generation (FHG); color center; two-photon absorption

### 1 引言

波长 266 nm 的紫外激光器在科学研究、医疗、工业生产等方面都有广泛的应用<sup>[1-3]</sup>。相比于红外和可见光波段的激光器,紫外激光具有较高的单光

子能量和更小的光焦。为了得到高重复频率,高单脉冲能量以及窄线宽的紫外激光,主要利用掺镱的锁模 1064 nm 的光纤激光器利用 LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub> (LBO) 或  $\beta$ -BaB<sub>3</sub>O<sub>3</sub> (BBO) 晶体倍频二次谐波效应 (SHG) 得

**基金项目:**国家自然科学基金青年项目 (No. 61401356) 资助。

**作者简介:**卢一鑫 (1982 -), 男, 硕士, 专业方向为非线性光学, 光电子器件的研究工作。E-mail: tongy1982@163.com

**收稿日期:**2017-01-10; **修订日期:**2017-02-18

到 532nm 绿光,再通过工作在紫外波段的非线性晶体角度相位匹配技术进行倍频,即四次谐波效应

(FHG)获得 266 nm 的紫外激光输出,通过频率转化得到 266 nm 的几种晶体主要参数见表 1。

表 1 产生紫外光主要几种非线性晶体相位匹配参数

Tab. 1 Phase-matching properties of some prominent UV nonlinear crystals

Crystal	UV Cutoff/nm	Interaction	$d_{\text{eff}}/(\text{pm} \cdot \text{V})$	PM Angle	$\alpha^{\text{UV}}@266\text{nm}/\text{cm}^{-1}$	Angular acceptance/ $(\text{mrad} \cdot \text{cm})$
CLBO <sup>[4]</sup>	180	Type-I(oo→e)	0.76	61.43°	-	0.47
RBBF <sup>[5]</sup>	170	Type-I(oo→e)	0.34	39.97°	0.62	0.28
KABO <sup>[6]</sup>	180	Type-I(oo→e)	0.26	56.79°	0.10	0.3
KBBF <sup>[7]</sup>	160	Type-I(oo→e)	0.39	36.37°	0.11	0.3
BBO <sup>[8]</sup>	180	Type-I(oo→e)	1.75	47.56°	<0.17	0.19

目前工作在紫外波段最常见的非线性晶体是 BBO 和 CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> (CLBO), CLBO 晶体较大的吸水性必须放在特殊的装置里进行实验,很不方便,也限制其应用范围。而 BBO 晶体在以上紫外波段晶体中的非线性光学系数是最高的,尽管有较大的走离角和较窄的接受带宽,BBO 晶体还是较为广泛的应用在产生紫外波段的激光器中。但是由于双光子吸收效应以及动态色心现象导致 266 nm 波长激光在较高的重复率下平均输出功率较低,以及稳定度下降等不利的影

响。本文报道了基于掺镱光纤脉冲激光器 1064 nm 基频光通过偏硼酸钡晶体( $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, BBO)晶体四次谐波技术获得 266 nm 的紫外激光输出,在重复频率为 80 MHz 平均输出功率为 3.5 W,532 nm 到 266 nm 的转化效率为 36.5%。实验数据表明晶体的温度匹配带宽与相干长度有一定的关系,并系统地研究了热效应对 266 nm 紫外激光主要参数的影响,发现双光子吸收效应导致了动态色心的形成,同时通过升高晶体温度可以显著降低色心强度,进而提高了紫外光的输出功率和稳定度。

## 2 实验装置

获得 266 nm 的紫外激光输出需要具有高单脉冲能量,窄脉冲宽度 1064 nm 基频光。实验的光路如图 1 所示。基频光 1064 nm 是商用锁模掺镱光纤激光器(fp-1060-20)提供,在重复率 80 MHz,脉冲宽度 20 ps,通过使用半波片与偏振分束器的组合调整输出功率大小,当进行频率转换时利用第二个半波片可以获得所需的偏振相位匹配条件。基频光 1064 nm 通过透镜 L<sub>1</sub> 聚焦后进入非线性光学晶体 SHG LBO 产生二次谐波(SH)532 nm 绿光,尺寸为 3 mm × 4 mm × 30 mm,作为 I 类(oo→e)非临界相位匹配方式(noncritical phase-matching, NCPM)沿 x 光轴,切割角为  $\theta = 90^\circ$ ,  $\phi = 0^\circ$ 。LBO 出光端面镀减

反膜( $R < 0.1\%$ )对于 1064 nm 和 532 nm 波长,并接温度控制器保持相位匹配温度为 148.2 °C,其精度可以达到  $\pm 0.1$  °C。通过双色镜(M<sub>S</sub>)把绿光与基频光分离开,M<sub>S</sub>对 1064 nm 高透( $T > 99\%$ ),对 532 nm 高反( $R > 99\%$ )。利用 SHG LBO 在 1064 nm 基频光输入功率搭 16.8 W 可以获得 9.1 W 的 532 nm 倍频光,绿光通过透镜 L<sub>2</sub> 校准,后经过透镜 L<sub>3</sub> 光斑整形后进入 FHG BBO 晶体,通过 I 类(oo→e)角度相位匹配  $\theta = 47.56^\circ$  获得四倍频 266 nm 紫外激光输出,BBO 出光端面镀减反膜( $R < 0.1\%$ )对于 532 nm 和 266 nm 波长,经过双色镜(M<sub>F</sub>),M<sub>F</sub>对 532 nm 高透( $T > 98\%$ ),对 266 nm 高反( $R > 99\%$ )分离出 266 nm 紫外激光,利用 FGUV5 玻璃进一步过滤。

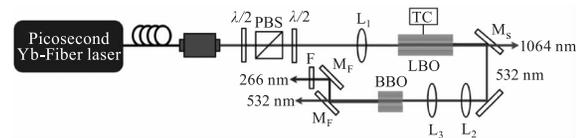


图 1 266nm 紫外脉冲激光器实验光路

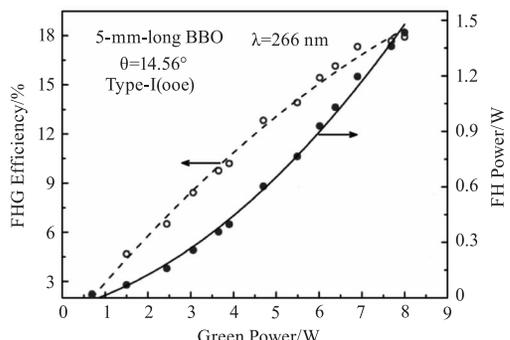
Fig. 1 Block scheme of the 266nm UV pulsed laser experimental setup

## 3 实验结果讨论

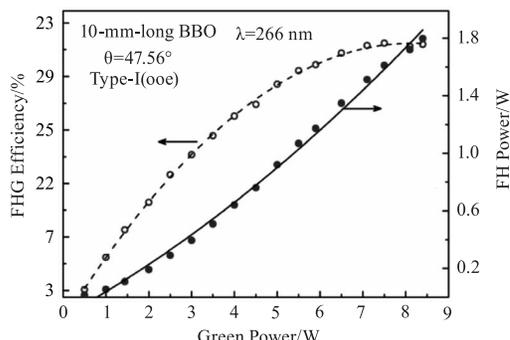
为了分析紫外激光输出功率的相关特性,实验中使用了长度分别为 5 mm 和 10 mm 两个 BBO 作为 FHG 晶体输出 266 nm 激光。通过优化二次谐波光斑聚焦尺寸可以增加非线性耦合系数,从而提高四次谐波的转化效率。利用 Boyd-Kleinman 理论计算可知 5 mm 和 10 mm 的 SFG 光束的最佳束腰半径分别为  $w_{SH1} \sim 13 \mu\text{m}$  和  $w_{SH2} \sim 19 \mu\text{m}$ ,其相应 FHG 转化效率达到最大,鉴于两者的差异很小,光束束腰半径统一为  $w_{SH} \sim 19 \mu\text{m}$ 。紫外激光的平均输出功率实验结果如图 2 所示。

5 mm FHG BBO 晶体在 532 nm 绿光输入功率为 8 W 时 266 nm 紫外激光输出功率最大为 1.4 W,最大的转化效率 18%。随着绿光输入功率的增加,

紫外激光输出功率呈二次方的增长,相应的转化效率曲线近乎于线性变化,表明非线性转化过程中没有受到其他因素的干扰。10 mm FHG BBO 晶体在 532 nm 绿光输入功率为 8.4 W 时 266 nm 紫外激光输出功率最大为 1.8 W,最大的转化效率 21.4%。而转化效率曲线明显不再线性变化,其实验数据随着绿光输入功率的增加而趋向极值,表明在转化过程时此非线性效应已趋向于饱和状态,这种现象可能是由于 BBO 晶体对于绿光波长以及紫外光波长的线性以及非线性吸收造成的热效应所导致的。



(a)5 mm FHG BBO晶体



(b)10 mm FHG BBO

图2 紫外激光输出功率与转换效率随着绿光功率变化关系

Fig. 2. Variation of the UV power and FHG efficiency as a function of the green power

在上述实验基础上通过使用长度为 10 mm 两个 BBO 晶体构成走离补偿系统<sup>[9]</sup>,进一步提高 266 nm FHG 的转换效率。保持光束进入第一个 BBO 晶体内的束腰半径为 19 μm,未经衰减的绿光以及产生的紫外光通过一对曲率半径  $r = 200$  mm 的平凹透镜组进行脉冲光斑聚焦整形使得进入第二个 BBO 晶体内的束腰半径保持在 20 μm,调节两个晶体之间的距离得到最大的转化效率,实验结果如 3 所示。当 532 nm 绿光平均输入功率为 8.2 W,可以获得输出功率最大达到 2.9 W 的 266 nm 紫外脉冲激光,相应的转换效率为 35%。在低功率工作时,转换效率呈线性增加,而到高功率阶段,就趋向于饱

和状态。在单一的晶体(SC)和双晶体(WC)不同条件下,分别可以获得 1.8 W 和 2.9 W 的 266 nm 的功率输出如图 4 所示。在相同的绿光输入功率条件下,通过走离补偿系统的紫外激光输出功率提高了 60%。经过计算紫外激光输出功率增加量为 13 mW 到 1.1 W,相应增强因子 1.5 ~ 1.6 之间,这可能由于在两个非线性晶体间的强聚焦限制有效相互作用长度,导致了增强因子比较低。

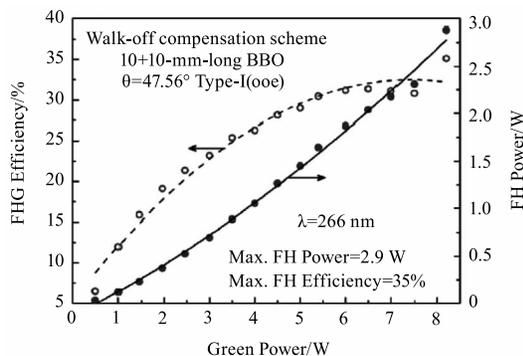


图3 走离补偿结构紫外激光输出功率与转换效率随着绿光功率变化关系

Fig. 3 FH power and efficiency scaling as a function of the input green power in walk-off Compensation configuration

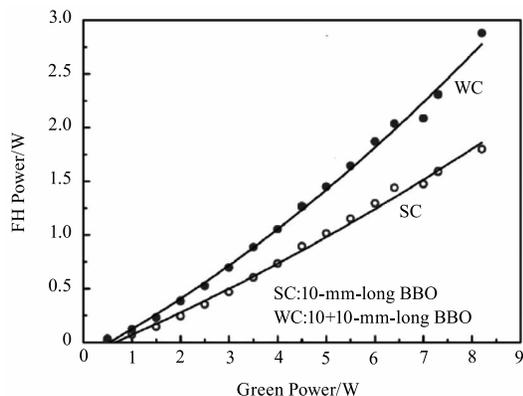


图4 单一的晶体和双晶体紫外激光输出功率随着绿光功率变化关系

Fig. 4 FH power after the first crystal (SC) and second walk-off compensation crystal (WC)

束腰半径较小的光束长时间进行非线性相互作用时可能会对晶体造成损害,在研究温度带宽时,使用长度 10 mm 的 BBO 以及束腰半径  $w$  约为 55 μm。实验测得温度匹配曲线符合  $\text{sinc}^2$  分布如图 5 所示,温度带宽为  $\Delta T = 33$  °C,远大于根据 BBO 的 Sellmeier 方程<sup>[10]</sup>的理论计算值  $\Delta T = 5.3$  °C。其相当于束腰半径  $w$  约为 55 μm、相干长度为 1.6 mm 的温度匹配曲线如图 6 所示,而由于走离现象,10 mm BBO 其有效相互作用长度只有 1.1 mm,晶体长度的剩余部分都参与了 532 nm 波长和 266 nm 波长的吸收。上述分析表明晶体相干长度的增加可能

是热梯度效应引起的,而热梯度效应是由于长尺寸的 BBO 对于绿光以及紫外光线性和非线性吸收产生热量,而晶体结构导致了非均匀加热。为了验证该想法,在室温条件下测量 BBO 晶体的表面温度结果如图 7 所示。

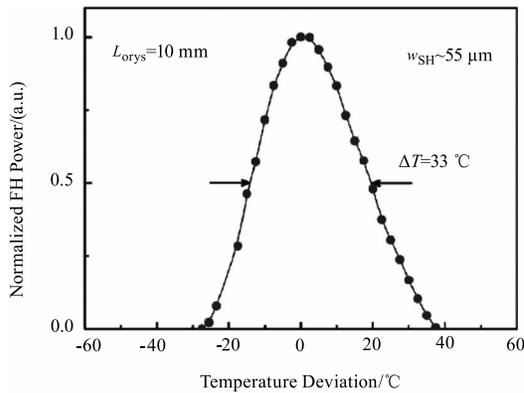


图 5 10 mm BBO 晶体温度匹配带宽实验数据

Fig. 5 Experimentally measured temperature acceptance bandwidth of 10 mm-long FHG BBO crystal

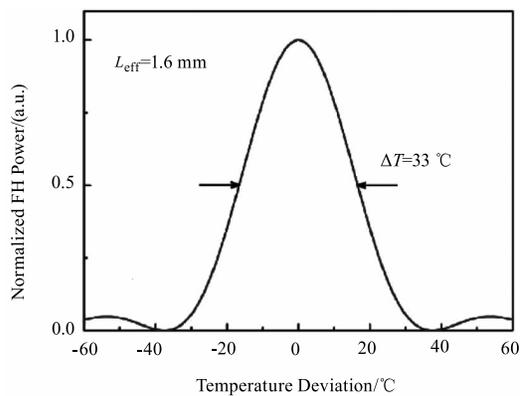


图 6 相干长度为 1.6 mm BBO 温度匹配带宽理论计算曲线

Fig. 6 Theoretically calculated temperature acceptance bandwidth of interaction length 1.6 mm BBO

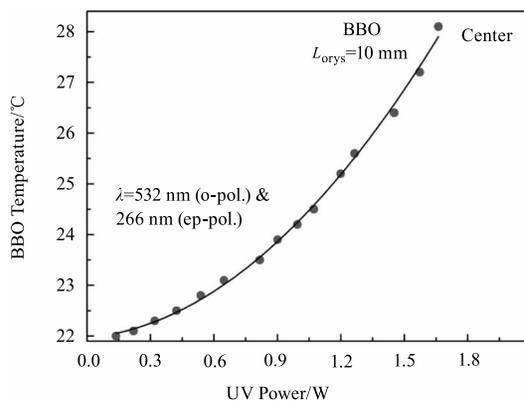


图 7 室温条件下绿光和紫外光的吸收导致 10 mm BBO 晶体表面温度变化关系

Fig. 7 Variation of the temperature measured directly at the surface of the 10 mm-long BBO crystal at room temperature, due to absorption at the green and UV wavelengths

随着绿光输入功率的增加,紫外光的输出功率同时增大,相应的 BBO 晶体的温度由 21.8 °C 上升到 27.9 °C,表明由于绿光以及紫外光导致了晶体温度的升高。同时为了较好地区分绿光以及紫外光对于晶体温度的影响程度,用 10 mm 的 BBO 晶体产生绿光,其温度由低功率的 21.8 °C,上升到 22.1 °C,此时绿光最大功率为 8 W,如图 8 所示;用另一个 10 mm 的 BBO 晶体产生紫外光,其温度由低功率的 21.8 °C,升到 23.1 °C 此时紫外光最大功率为 1.2 W,如图 9 所示。以上实验可以看到在紫外光单独作用下对于温度影响的程度大于绿光波长的影响,但还是低于总的温升。最后在同样条件下测得晶体端面温度呈非对称以及非均匀式增加,而且晶体的出射面温度比入射面高出 50%,由此证明存在热梯度效应。

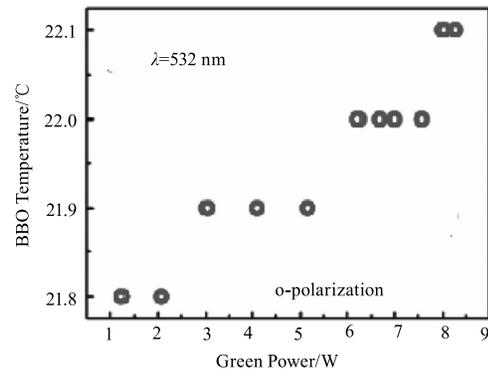


图 8 室温条件下绿光吸收导致 10 mm BBO 晶体表面温度变化关系

Fig. 8 Variation of the temperature measured directly at the surface of the 10 mm-long BBO crystal at room temperature due to absorption at the green wavelength

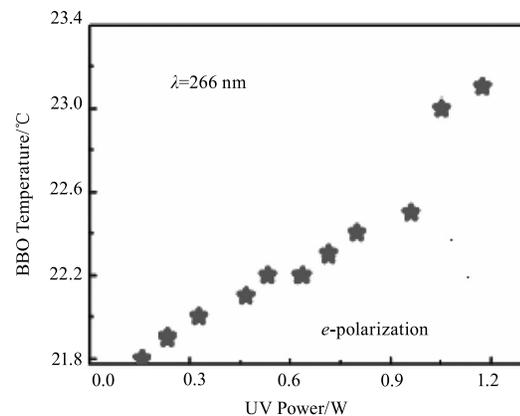


图 9 室温条件下紫外光的吸收导致 10 mm BBO 晶体表面温度变化关系

Fig. 9 Variation of the temperature measured directly at the surface of the 10 mm-long BBO crystal at room temperature due to absorption at UV wavelength

产生 266 nm 紫外线辐射时 BBO 晶体会出现双光子吸收现象或形成动态色心<sup>[11]</sup>, 这对于紫外激光器的工作稳定度来说是很大的影响。为了减轻紫外线辐射时带来的热效应, 通过测量 BBO 晶体在不同温度下 22 °C, 100 °C 以及 200 °C 对于 266 nm 紫外光的透过率的变化, 实验结果如图 10 所示。

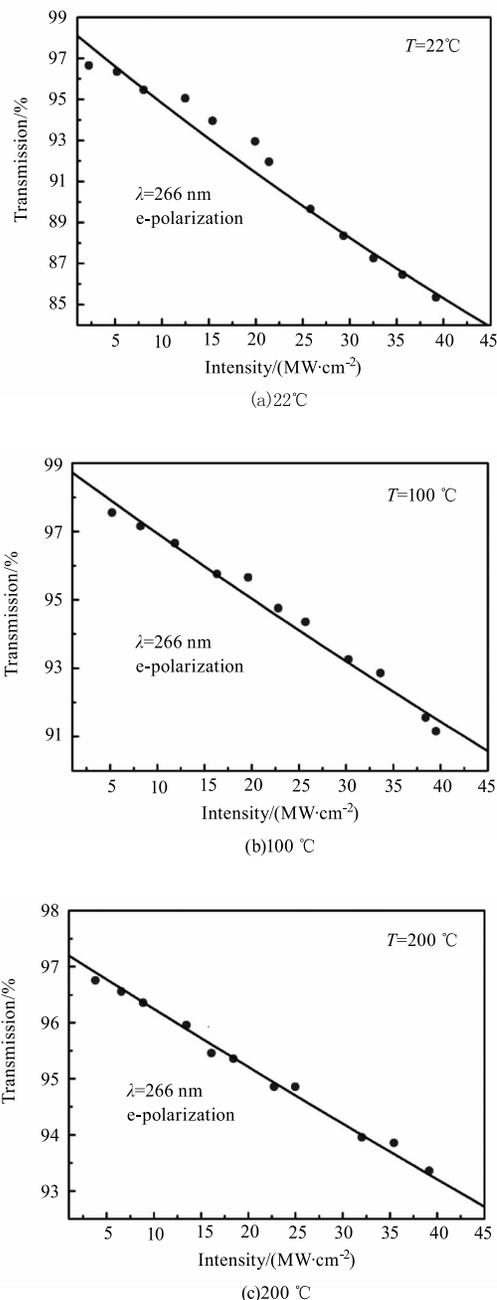


图 10 在晶体温度 22 °C, 100 °C 及 200 °C 时 BBO 紫外 266 nm 波长透过率随着输入强度变化关系  
Fig. 10 Variation of the BBO transmission at 266 nm as a function of the intensity at 22 °C, 100 °C, and 200 °C

可以看到随着温度的升高, 透过率随着强度变化越接近于线性关系, 在 200 °C 时 UV 的透过率

比 20 °C 增加了近 8%, 可以估算出双光子吸收系数  $\beta$  比室温时降低了 3.5 倍, 而色心密度与双光子吸收系数呈正相关, 从而可以更好抑制色心的出现。

同时测得的 266 nm 在输出功率 1.5 W 时的稳定度要比晶体工作在室温条件下高 3.2%。后续可以通过 Z-scan 仪器进行进一步的精确测量  $\beta$ , 进行优化取得更好的实验结果。

最后, 在光谱仪测得紫外脉冲激光中心波长 266 nm, 半高宽 (FWHM)  $\sim 0.9$  nm. 通过光电探测器在示波器上得到 266 nm 激光在重复频率 80 MHz 的脉冲宽度为 12.6 ns, 如图 11 所示。

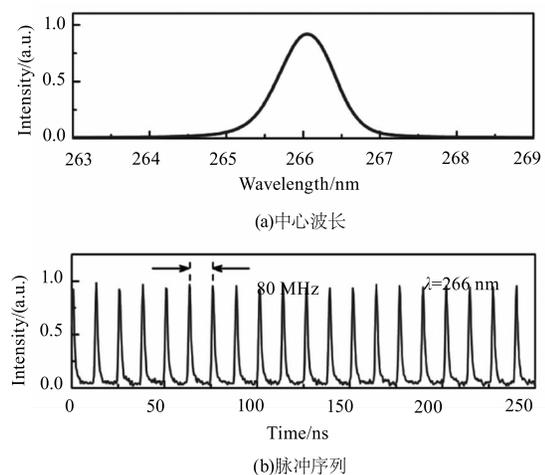


图 11 紫外辐射激光 266 nm  
Fig. 11 centered wavelength

#### 4 结论

本文报道了基于掺镱光纤脉冲激光器 1064 nm 基频光通过 BBO 晶体四倍频获得 266 nm 的紫外激光输出, 基于走离补偿系统在重复频率为 80 MHz 得到最大的平均输出功率为 3.5 W, 532 nm 到 266 nm 的转化效率为 36.5%。通过实验数据表明 10 mm BBO 晶体的温度匹配带宽较理论数据偏大, 是由于热梯度效应增加了其相干长度。并系统地研究了热效应对 266 nm 紫外激光主要参数的影响, 发现双光子吸收效应导致了动态色心的形成, 同时通过升高晶体温度可以显著降低色心密度, 进而提高了紫外光的输出功率和稳定度。

#### 参考文献:

- [1] Angelov D, Beylot B, Spassky A. Origin of the heterogeneous distribution of the yield of guanyl radical in UV laser photolyzed DNA [J]. Biophysical Journal, 2005, 88 (4): 2766 - 2771.

- [2] Le H R, König K, Wüllner C, et al. Ultraviolet femtosecond laser creation of corneal flap[J]. *Journal of Refractive Surgery*, 2009, 25(4): 383 – 389.
- [3] Park S J, Song J H, Lee G A. Analysis of UV laser machining process for high density embedded IC substrates[J]. *Advanced Materials Research*, 2012, 630: 171 – 174.
- [4] Sakuma J, Asakawa Y, Obara M. Generation of 5-W deep-UV continuous-wave radiation at 266 nm by an external cavity with a CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> crystal. [J]. *Optics Letters*, 2004, 29(1): 92 – 94.
- [5] Chen C, Luo S, Wang X, et al. Deep UV nonlinear optical crystal: RbBe<sub>2</sub>(BO<sub>3</sub>)F<sub>2</sub>[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2009, 26(8): 1519 – 1525.
- [6] Wang Y, Wang L, Gao X, et al. Growth, characterization and the fourth harmonic generation at 266nm of K<sub>2</sub>Al<sub>2</sub>B<sub>2</sub>O<sub>7</sub> crystals without UV absorptions and Na impurity[J]. *Journal of Crystal Growth*, 2012, 348(1): 1 – 4.
- [7] Wang L, Zhai N, Liu L, et al. High-average-power 266 nm generation with a KBe<sub>2</sub>BO<sub>3</sub>F<sub>2</sub> prism-coupled device[J]. *Optics Express*, 2014, 22(22): 27086.
- [8] Chaitanya K S, Canals C J, Sanchez B E, et al. Yb-fiber-laser-based, 1.8 W average power, picosecond ultraviolet source at 266 nm [J]. *Optics Letters*, 2015, 40(10): 2397 – 2400.
- [9] Zhou Xugui, Wang Yanling, Wu Hong, et al. High efficiency frequency-doubling of femtosecond laser pulses with simultaneously spatial walk-off and phase velocity compensation[J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, 29(9): 2630 – 2634. (in Chinese)  
周绪桂, 王燕玲, 吴洪, 等. 空间走离和相速度补偿的高效飞秒脉冲倍频[J]. *光学学报*, 2009, 29(9): 2630 – 2634.
- [10] Zhang D, Kong Y, Zhang J Y. Optical parametric properties of 532 nm-pumped beta-barium-borate near the infrared absorption edge [J]. *Optics Communications*, 2000, 184(5): 485 – 491.
- [11] Takahashi M, Osada A, Dergachev A, et al. Improved fourth harmonic generation in β-BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> by tight elliptical focusing perpendicular to walk-off plane [J]. *Journal of Crystal Growth*, 2011, 318(1): 606 – 609.