

文章编号: 1001-4322(2005)10-1489-04

深紫外和频晶体 CLBO 产生 193 nm 激光的频率变换

周 城

(济南大学 理学院, 山东 济南 250022)

摘 要: 简述了深紫外和频晶体 CLBO 的光学特性。根据相位匹配角公式、非线性有效系数公式、走离角公式和允许角公式,详细计算了 CLBO 晶体和频产生 193 nm 激光时的相位匹配角、非线性有效系数、和频时谐波走离角、允许角的具体数值。根据这些数值,并考虑产业化的要求,对目前几种和频方式进行了比较,最终选定波长为 $\lambda_1 = 2100$ nm 的 o 光和波长为 $\lambda_2 = 213$ nm 的 e 光作为基频光进行和频的匹配方式。此方式相位匹配角为 51.6° ;具有大的非线性有效系数 0.97 ,小的走离角 3.7° ;大的允许角 1.9×10^{-6} rad·mm,是非常理想的产生 193 nm 激光的匹配方式。

关键词: 频率变换; CLBO 晶体; 和频; 193 nm 激光

中图分类号: TN248.1 **文献标识码:** A

随着激光技术的不断进步,LD 泵浦 193 nm 紫外固体激光器的产生成为可能。由于 193 nm 紫外激光作为当前全世界微电子光刻产业的光源倍受国内外专家的重视,此外作为眼科手术中的光源也引起了医学专家的浓厚兴趣,因此 193 nm 紫外激光器的研究已成为当今激光领域的一个研究热点。与准分子激光器相比,LD 泵浦 193 nm 紫外固体激光器具有重复频率高、峰值功率低、寿命长和相干性好、结构紧凑、体积小、应用范围广而成为近来国际上固体激光器领域的一个研究热点。

通过频率转换的方式获得 193 nm 的激光,最为关键的是和频晶体。由于 193 nm 已经属紫外波段,大多数晶体对它的透过率极低。而近几年来新研制的 CLBO 晶体其透光波段的下限特别低,约是 180 nm,比 BBO (为 189 nm)晶体低 9 nm,可用于产生 193 nm 的激光,同时还具有抗损伤阈值高、生长尺寸大等优点^[1]。目前,关于用 CLBO 晶体产生 193 nm 的激光主要集中在实验上^[2],本文给出了普遍适用的和频公式,并根据该公式进行了相位匹配角、非线性有效系数、走离角和允许角的计算。根据这些数值,并考虑实际操作的难易程度,对目前几种和频方式进行了比较,最终选定了切实可行的获得 193 nm 激光的匹配方式。

1 CLBO 晶体的物理特性

CLBO 晶体,化学式是 $\text{Ca}_2\text{LiB}_6\text{O}_{10}$,是负单轴晶体;透光波段为 175 ~ 2750 nm;晶体结构是四方结构;空间点群为 $I42d$;单胞参数 $a = 1.0494$ nm, $c = 0.8939$ nm;对称性: $Z = 4$;非线性有效系数 $d_{36} = 0.95 \times 10^{-12}$ m/V (1064 nm), $d_{36} = 1.01 \times 10^{-12}$ m/V (532 nm)^[3]。破坏阈值为 24×10^9 W/cm² 时,其 Sellmeier 方程为^[4]

$$n_o^2 = 2.2145 + \frac{0.00890}{\lambda^2 - 0.02051} - 0.01413 \lambda^{-2} \quad (1)$$

$$n_e^2 = 2.0588 + \frac{0.00866}{\lambda^2 - 0.01202} - 0.00607 \lambda^{-2} \quad (2)$$

式中: n_o 是 o 光在晶体中的折射率; n_e 是 e 光的折射率; λ 是波长,其单位是 μm 。

2 CLBO 晶体的非线性特性

2.1 和频时的相位匹配角

2.1.1 类 (o + o e) 和频匹配角

设两基频光的频率分别为 ω_1 和 ω_2 ,与之相应的波长分别是 λ_1 和 λ_2 ;和频光的频率为 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$,与之相应的波长是 λ_3 ;设 $\lambda_1 < \lambda_2 < \lambda_3$,则, $\lambda_1 > \lambda_2 > \lambda_3$ 。在共线相互作用下,根据动量和能量守恒,为了便于计算,由文献 [5] 可得含匹配角的匹配公式为

* 收稿日期: 2004-03-25; 修订日期: 2004-08-24
基金项目: 济南大学青年基金资助课题 (No: Y0415)

作者简介: 周 城 (1974—),男,山东省夏津县人,硕士,讲师,主要从事激光器件和非线性频率变换技术的研究; E-mail: cczhoucheng@ sina.com

$$\left\{ \left[\frac{\cos m}{n_o(\omega_3)} \right]^2 + \left[\frac{\sin m}{n_e(\omega_3)} \right]^2 \right\}^{-\frac{1}{2}} = \frac{1}{2} [(1 + \cos 2m) n_o(\omega_1) + (1 - \cos 2m) n_o(\omega_2)] \quad (3)$$

式中: $\cos 2m = \frac{1 - \frac{n_o^2(\omega_2)}{n_o^2(\omega_3)}}{1 - \frac{n_o^2(\omega_1)}{n_o^2(\omega_3)}}$; m 是匹配角; $n_o(\omega_1)$, $n_o(\omega_2)$ 和 $n_o(\omega_3)$ 分别是频率为 ω_1 , ω_2 和 ω_3 的 o 光在晶体中的主轴折射率; $n_e(\omega_3)$ 是频率为 ω_3 的 e 光在晶体中的主轴折射率。

2.1.2 类和频的匹配角

设频率为 ω_1 的光为 o 光, 频率为 ω_2 的光为 e 光, 即 o+e 的匹配类型为 (1) 类相位匹配; 设频率为 ω_1 的光为 e 光, 频率为 ω_2 的光为 o 光, 即 e+o 的匹配类型为 (2) 类相位匹配。在共线相互作用下, 根据动量和能量守恒, 由文献 [5] 得 (1) 类 (e+o) 相位匹配角公式为

$$\left\{ \left[\frac{\cos m}{n_o(\omega_3)} \right]^2 + \left[\frac{\sin m}{n_e(\omega_3)} \right]^2 \right\}^{-\frac{1}{2}} = \frac{1}{2} \left\{ (1 + \cos 2m) n_o(\omega_1) + (1 - \cos 2m) \left[\left[\frac{\cos m}{n_o(\omega_2)} \right]^2 + \left[\frac{\sin m}{n_e(\omega_2)} \right]^2 \right]^{-\frac{1}{2}} \right\} \quad (4)$$

(2) 类 (e+o) 相位匹配角公式为

$$\left\{ \left[\frac{\cos m}{n_o(\omega_3)} \right]^2 + \left[\frac{\sin m}{n_e(\omega_3)} \right]^2 \right\}^{-\frac{1}{2}} = \frac{1}{2} \left\{ (1 + \cos 2m) \left[\left[\frac{\cos m}{n_o(\omega_2)} \right]^2 + \left[\frac{\sin m}{n_e(\omega_2)} \right]^2 \right]^{-\frac{1}{2}} + (1 - \cos 2m) n_o(\omega_2) \right\} \quad (5)$$

式中: $n_e(\omega_1)$ 和 $n_e(\omega_2)$ 分别是相应频率的光在晶体中的主轴折射率。

2.2 和频时的非线性有效系数

由于 CLBO 晶体的空间点群是 $I42d$, 其非线性有效系数主要与 d_{36} 有关^[6], 在 Kleinman 近似下, 其和频时的类非线性有效系数为

$$d_{\text{eff}}(\omega) = d_{36} \sin m \sin(2\phi) \quad (6)$$

类非线性有效系数为

$$d_{\text{eff}}(\omega) = d_{36} \sin(2m) \sin(2\phi) \quad (7)$$

式中: m 是相位匹配角; ϕ 是方位角。

2.3 和频时的走离角

对于负单轴晶体, 在通常情况下, 类相位匹配的走离角计算公式^[7]为

$$\tan \theta = \frac{1}{2} n_o(\omega_1) n_o(\omega_2) \left[\frac{1}{n_e^2(\omega_3)} - \frac{1}{n_o^2(\omega_3)} \right] \sin^2(2m) \quad (8)$$

类相位匹配时, 和频光的走离角计算公式^[7]为

$$\tan \theta = \frac{1}{2} \frac{n_e^2(\omega_3) - n_o^2(\omega_3)}{n_o^2(\omega_3) \sin^2 m + n_e^2(\omega_3) \cos^2 m} \sin(2m) \quad (9)$$

(1) 相位匹配时, 基频光的走离角计算公式^[8]为

$$\tan \theta = \frac{1}{2} \frac{n_e^2(\omega_2) - n_o^2(\omega_1)}{n_o^2(\omega_1) \sin^2 m + n_e^2(\omega_2) \cos^2 m} \sin(2m) \quad (10)$$

(2) 相位匹配时, 基频光的走离角计算公式^[7]为

$$\tan \theta = \frac{1}{2} \frac{n_e^2(\omega_1) - n_o^2(\omega_2)}{n_o^2(\omega_2) \sin^2 m + n_e^2(\omega_1) \cos^2 m} \sin(2m) \quad (11)$$

2.4 和频时的允许角

对于单轴晶体, 当三个波波矢方向为 $k = k_m + k$ 时, 相位失配量 k 为

$$k = k_3 - k_2 - k_1 = \frac{\omega_3}{c} n_3(\omega_3) - \frac{\omega_2}{c} n_2(\omega_2) - \frac{\omega_1}{c} n_1(\omega_1) \quad (12)$$

将相位失配量 k 对 m 在 m 附近泰勒展开, 并只取前两项, 与 $k = \frac{\omega}{L}$ 连立, 再考虑 $k|_{m=m} = 0$, 便求得

$$m = \frac{\pm \omega / L}{\left. \frac{d(k)}{dm} \right|_{m=m}} \quad (13)$$

所以, 对于负单轴晶体, 和频时允许角的具体表达式为

$$m = \pm 2c \left| \frac{\omega / L}{3 n_e^3(\omega_3, m) [n_e^{-2}(\omega_3) - n_o^{-2}(\omega_3)] \sin(2m)} \right| \quad (14)$$

$$(1) = \pm 2c \left| \frac{L}{3n_e^3(\omega_3, m) [n_e^2(\omega_3) - n_o^2(\omega_3)] \sin(2\theta_m) - n_e^3(\omega_1, m) [n_e^2(\omega_1) - n_o^2(\omega_1)] \sin(2\theta_m)} \right| \quad (15)$$

$$(2) = \pm 2c \left| \frac{L}{3n_e^3(\omega_3, m) [n_e^2(\omega_3) - n_o^2(\omega_3)] \sin(2\theta_m) - 2n_e^3(\omega_2, m) [n_e^2(\omega_2) - n_o^2(\omega_2)] \sin(2\theta_m)} \right| \quad (16)$$

3 193 nm 激光的产生

目前,采用固体增益介质倍频方式产生 193 nm 激光非常困难,但采用和频方式产生 193 nm 激光是可能的,根据目前可得到的固体激光器的波长,根据前面的公式,经过详细计算,有两组基频波长,即 $\omega_1 = 2100 \text{ nm}$ 和 $\omega_2 = 213 \text{ nm}$ 为一组,称为 A 组; $\omega_1 = 1047 \text{ nm}$ 和 $\omega_2 = 237 \text{ nm}$ 为一组,称为 B 组,均满足相位匹配条件。图 1 是 A 组的相位匹配曲线图,图中将波长 ω_2 设为定值即 $\omega_2 = 213 \text{ nm}$,随波长 ω_1 的变化,相位匹配角与和频波长的变化,实线是 (1) 类相位匹配曲线,另一条为 (2) 类相位匹配曲线。由于 LD 泵浦掺 Nd 的 1064 nm 激光器已经产业化,对其 5 倍频可获得 213 nm 激光,而产生 2100 nm 激光的产品早就问世,因此选择 $\omega_1 = 2100 \text{ nm}$ 和 $\omega_2 = 213 \text{ nm}$ 通过和频的方式获得 193 nm 的激光是可行的;而 1047 nm 激光器产品也早就问世,且通过参量放大技术可获得 237 nm 的激光,因此选择 $\omega_1 = 1047 \text{ nm}$ 和 $\omega_2 = 237 \text{ nm}$ 通过和频的方式获得 193 nm 的激光也是可行的。

根据前面的理论公式,经过详细计算得到 A 组与 B 组分别和频产生 193 nm 激光的相位匹配角、非线性有效系数、走离角、允许角的具体值并列于表 1。从表 1 可以看出:对 A 组来说,非线性有效系数 (2) 类相位匹配大于 (1) 类,接收角 (2) 类相位匹配大于 (1) 类, (2) 类相位匹配的走离角小于 (1) 类相位匹配; A 组的 (2) 类相位匹配与 B 组的 (1) 类相位匹配的非线性有效系数非常接近,而 A 组 (2) 类相位匹配的接收角远大于 B 组的 (1) 类相位匹配的接收角, A 组 (2) 类相位匹配的走离角与 B 组的 (1) 类相位匹配的走离角比较接近。从实际操作的角度考虑, A 组的 (2) 类匹配方式由于具有非常大的接收角而易于实际操作,这两组相位匹配方式的实际实验结果在文献 [2] 中已经得到证实,因此该类匹配方式对于 193 nm 激光器的实现是切实可行的匹配方式。

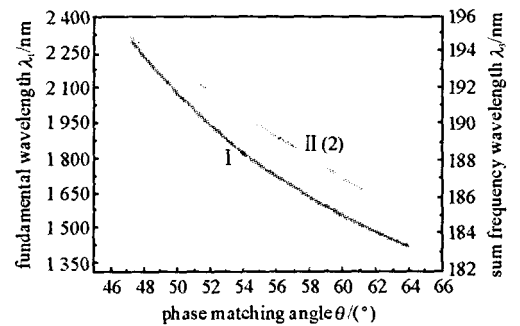


Fig 1 Phase-matching curve of 193 nm laser

图 1 193 nm 相位匹配曲线

表 1 产生 193 nm 激光的和频参数

Table 1 Sum-frequency properties of 193 nm laser generation

	phase-matching angle / (°)		effective nonlinear coefficient / (pm · V ⁻¹)		walk-off angle / (°)		acceptance angle / (10 ⁻⁸ rad · mm)					
	(1)	(2)	(1)	(2)	(1)	(2)	(1)	(2)				
A	50.25	no	51.6	0.77	no	0.97	7.0	no	3.7*	4.05	no	190
B	78.0	no	no	0.98	no	no	2.8	no	no	1.54	no	no

* 该值是和频光的走离角值,其值小于基频光的走离角值

4 结 论

本文给出了通过和频方法进行频率变换的参数的普遍适用的公式,并根据这些公式详细计算了相位匹配角、非线性有效系数、走离角和允许角。根据这些参数,并考虑产业化的要求,对目前几种和频方式进行了比较,最终选定 A 组的 (2) 类匹配方式是最切实可行的获得 193 nm 激光的匹配方式,关于该匹配方式的具体实验方案和实验操作正在进行中。这将为 LD 泵浦 193 nm 全固态深紫外激光器的研制提供重要的参考依据。

参考文献:

[1] Mori Y, Kuroda I, Nakajima S, et al New nonlinear optical crystal: cesium lithium borate[J]. *Appl Phys Lett*, 1995, **67**(13): 1818—1820.
 [2] Sakuna J, Finch A, Ohsako Y, et al High power, narrowband, DUV laser source by frequency mixing in CLBO [A]. *Proc of SPIE [C]*. 2000, **3889**: 516—523.

- [3] 张秀荣,张顺兴,柴耀. 新型非线性晶体—— CLBO 的倍频效应[J]. 中国激光, 2000, 27(7): 669—672. (Zhang X R, Zhang S X, Chai Y. Harmonic generation in a new nonlinear crystal CLBO . *Chinese J of Laser*, 2000, 27(7): 669—672)
- [4] Sasaki T, Mori Y. Nonlinear optical crystal CLBO for UV generation[A]. Proc of SPIE [C]. 1998, 3244: 88—95.
- [5] 姚建铨. 非线性光学频率变换及激光调谐技术[M]. 北京:科学出版社, 1995. 22 (Yao J Q. Nonlinear optics frequency changing and laser tuning technology. Beijing: Science Press, 1995. 22)
- [6] Yap Y K, Haramura S, Taguchi A, et al CLBO crystal for frequency doubling the Nd: YAG laser[J]. *Optics Communications*, 1998, 145: 101—104.
- [7] 钱士雄,王恭明. 非线性光学——原理与进展[M]. 上海:复旦大学出版社, 2001. 65. (Qian S X, Wang GM. Nonlinear optics—principles and developments. Shanghai: Fudan University Press, 2001. 65)
- [8] 姚建铨. 非线性光学频率变换及激光调谐技术[M]. 北京:科学出版社, 1995. 24. (Yao J Q. Nonlinear optics frequency changing and laser tuning technology. Beijing: Science Press, 1995: 24)

Frequency conversion of generating 193 nm laser by deep ultraviolet sum-frequency crystal CLBO

ZHOU Cheng

(School of Science, Jinan University, Jinan 250022, China)

Abstract: The properties of nonlinear frequency conversion in a new deep ultraviolet sum-frequency crystal CLBO were discussed. The data for sum-frequency CLBO crystal generating 193 nm laser of phase-matching angle, effective nonlinear coefficient, walk-off angle and maximum acceptance angle were calculated. According to those data and taking account of lasers commercialization requirements, several phase-matching projects were compared. At last, the phase-matching type of $2100 \text{ nm (o)} + 213 \text{ nm (e)} = 193 \text{ nm (e)}$ was selected. The phase-matching type of $2100 \text{ nm (o)} + 213 \text{ nm (e)} = 193 \text{ nm (e)}$ with large effective nonlinear coefficient of 0.97, small walk-off angle 3.7° and big acceptance angle $1.9 \times 10^{-6} \text{ rad} \cdot \text{mm}$ was proved to be the optimum for generating 193 nm laser.

Key words: Frequency conversion; CLBO crystal; Sum-frequency; 193 nm laser