第 51 卷 第 14 期/2024 年 7 月/中国激光 研究论文

中国激光

采用BBO晶体产生266 nm深紫外激光过程中的热特性研究

王子文[1]，曹雪辰[1]，张艳林[1]，程东林[1]，靳丕钰[1,2]，卢华东[1,2*]

[1]山西大学光电研究所量子光学与光量子器件国家重点实验室，山西 太原 030006；

[2]山西大学极端光学协同创新中心，山西 太原 030006

摘要 基于近红外波段1064 nm激光的四倍频过程是产生深紫外激光的有效技术手段之一。然而，非线性晶体在产生深紫外激光的过程中，晶体内部严重的非线性吸收带来的热效应会破坏其相位匹配条件，进而制约深紫外激光功率的提升。为此，在利用偏硼酸钡（BBO）晶体作为1064 nm近红外光四倍频过程的非线性转化介质的基础上，通过对不同匹配温度下的晶体内部温升情况进行研究，发现提高晶体匹配温度可以有效减缓晶体内部由非线性吸收引起的热效应，改善深紫外激光功率输出。最终，在晶体匹配温度为180 ℃、绿光输入功率为16 W时，获得了重复频率为20 kHz、单脉冲宽度为4 ns、平均功率为2.56 W的266 nm深紫外激光。通过建立BBO晶体非线性吸收理论模型，进一步计算了不同匹配温度、不同紫外激光功率下的非线性吸收系数和归一化色心密度，结果显示，非线性吸收系数与紫外激光功率强度正相关，并且在紫外激光功率均为2.25 W时，相较于60 ℃，匹配温度为180 ℃的晶体其非线性吸收系数减小了近63%，色心密度也降低了57%，该研究结果对实现高功率的266 nm深紫外激光的输出具有重要意义。

关键词 266 nm深紫外激光；非线性吸收；热效应；匹配温度；高功率；偏硼酸钡

中图分类号 TN248.1 **文献标志码** A **DOI**：10.3788/CJL231578

1 引 言

高功率全固态深紫外（DUV）激光器因其具有结构紧凑、单光子能量高、长期稳定性好等优点在拉曼光谱、光生物成像、集成电路刻蚀、精密微加工等科学研究、医疗诊断以及工业制造领域有许多重要的应用[1-3]。目前研究相对比较成熟的是全固态266 nm深紫外激光器，因为其可以通过掺钕离子1064 nm固体激光器的四倍频过程直接产生，即首先将掺钕离子1064 nm固体激光器利用三硼酸锂（LBO）或者磷酸钛氧钾（KTP）等晶体转化为二次谐波532 nm绿光，然后通过硼酸铯锂（CLBO）、偏硼酸钡（BBO）、氟硼铍酸钾（KBBF）、氟硼铍酸铷（RBBF）[4-5]等晶体将产生的532 nm激光转化为四次谐波266 nm深紫外激光。在这些可以产生深紫外激光输出的非线性晶体中，尽管KBBF及RBBF晶体可以产生短至150 nm的深紫外激光，但由于其生长困难且造价较高，目前还未能实现真正的商业应用，使用比较广泛的主要是CLBO和BBO晶体。

2000年，日本大阪大学Kojima等[6]就利用重复频率为10 kHz、脉冲宽度为80 ns、平均功率为106 W的Nd∶YAG绿光激光器通过CLBO晶体四倍频获得了20 W的266 nm激光输出；并且在2003年，通过提高CLBO晶体结晶度以及增大绿光功率的方式将获得的深紫外激光输出功率提升到40 W[7]；2024年，俞航航等[8]使用重复频率为100 kHz、平均功率为35 W的532 nm纳秒激光作为基频光，实现了最高功率为14 W的266 nm激光输出，532 nm到266 nm激光转换效率可达41%，这也是目前为止国内使用CLBO晶体产生266 nm深紫外激光的最高转换效率。但是CLBO晶体在空气中容易发生潮解[9]，为解决该问题，2022年日本Spectronix公司Orii等[10]将CLBO晶体放置于高温密封干燥的气室中进行四倍频，产生了平均功率为35.5 W、重复频率为600 kHz、脉冲宽度为8 ps的266 nm深紫外激光，并且在20 W的功率下稳定工作10000 h[11]。与CLBO晶体相比，BBO晶体具有非线性系数高、潮解少、化学性能稳定等优点，同样适合研制和开发实用化全固

收稿日期：2023-12-26；**修回日期**：2024-01-31；**录用日期**：2024-02-28；**网络首发日期**：2024-03-13

基金项目：国家自然科学基金（61975100，62105192）、国家重点研发计划（2022YFC2204003）、山西省杰出青年培育项目（202103021221004）、山西省留学基金委资助研究项目（2022-015）、山西省科技创新人才计划（202204051002005）、山西省专利转化专项计划项目（202305007）、山西省1331工程项目、第一实验室-国创中心（山西）科技创新项目

通信作者：*luhuadong@sxu.edu.cn

态深紫外激光器。

近年来，利用BBO晶体已经获得脉冲宽度从纳秒到飞秒量级的高峰值功率全固态266 nm激光器[12-14]。2008年清华大学Liu等[12]采用主振荡功率放大Nd∶YVO_4激光器作为红外基频光源，利用BBO晶体通过四倍频过程获得了重复频率为100 kHz、脉冲宽度为10 ns的14.8 W高功率266 nm深紫外激光输出，绿光到紫外的转换效率为18.3%；2019年Rao等[13]同样采用BBO晶体对重复频率为78 MHz、脉冲宽度为190 fs、平均功率为2.4 W的绿光进行倍频，成功获得0.6 W的266 nm深紫外激光，但是这些采用BBO作为四倍频晶体的方案所获得的深紫外激光的转换效率普遍较低，尤其是在高功率的266 nm深紫外激光产生过程中，功率饱和现象尤为严重。这是由于BBO晶体在高峰值功率的强紫外光照射时存在严重的双光子吸收，并且会在晶体中形成大量色心缺陷[15-16]，进一步加剧了BBO晶体对紫外光的非线性吸收，因此晶体通光区域被局部加热，进而在晶体内部形成较大的温度梯度，导致晶体内的各个部分不再同时满足相位匹配条件，最终限制了266 nm深紫外激光功率的提升，而且对产生的深紫外激光器的长期稳定性以及光束质量也有很大的影响[17]。为此，日本大阪大学Yap等[18]在1998年发展了一种补偿晶体输出端面温度不均匀分布的技术和方法，通过在晶体输出端面喷射氮气进行制冷，将绿光到紫外的激光转换效率提高了2.3倍。2011年，日本三菱材料公司Takahashi等[19]则利用椭圆光束进行倍频，通过调整绿光和产生的深紫外光之间的重叠来减少BBO晶体中的非线性吸收，从而直接限制晶体内部产热，实现了最高功率5 W的深紫外激光输出，绿光到紫外的转换效率为23.8%。相较于圆光束，利用椭圆光束倍频其最高输出功率提升1.7倍，但使用该方法在绿光输入功率较低时倍频转换效率较低，且在高功率运转时深紫外激光光束质量较差。

基于此，本文在搭建全固态1064 nm近红外光四倍频产生266 nm深紫外激光实验装置的基础上，深入研究了四倍频过程中不同匹配温度下的BBO晶体内部温升情况及其对266 nm深紫外激光输出功率的影响，实验数据表明，提高晶体匹配温度可以有效减缓晶体内部由非线性吸收引起的热效应，进而改善深紫外激光功率输出，当晶体匹配温度从60 ℃提升为180 ℃时，266 nm深紫外激光的最大输出功率也由2.25 W增加为2.56 W。同时，通过分析四倍频过程中BBO晶体的产热机理，在构建非线性吸收理论模型从而获得晶体温度场分布的基础上，利用实验数据进一步对不同匹配温度、不同紫外激光功率下的非线性吸收系数和归一化色心密度进行了计算，本文的研究内容为实现高功率的266 nm深紫外激光的输出提供了很好的参考。

2 实验装置

为了获得高效稳定运转的266 nm深紫外激光器，本文搭建了如图1所示的全固态266 nm深紫外激光产生装置，该装置由腔倒空全固态Nd∶YVO_4激光器、二倍频系统以及四倍频系统组成。

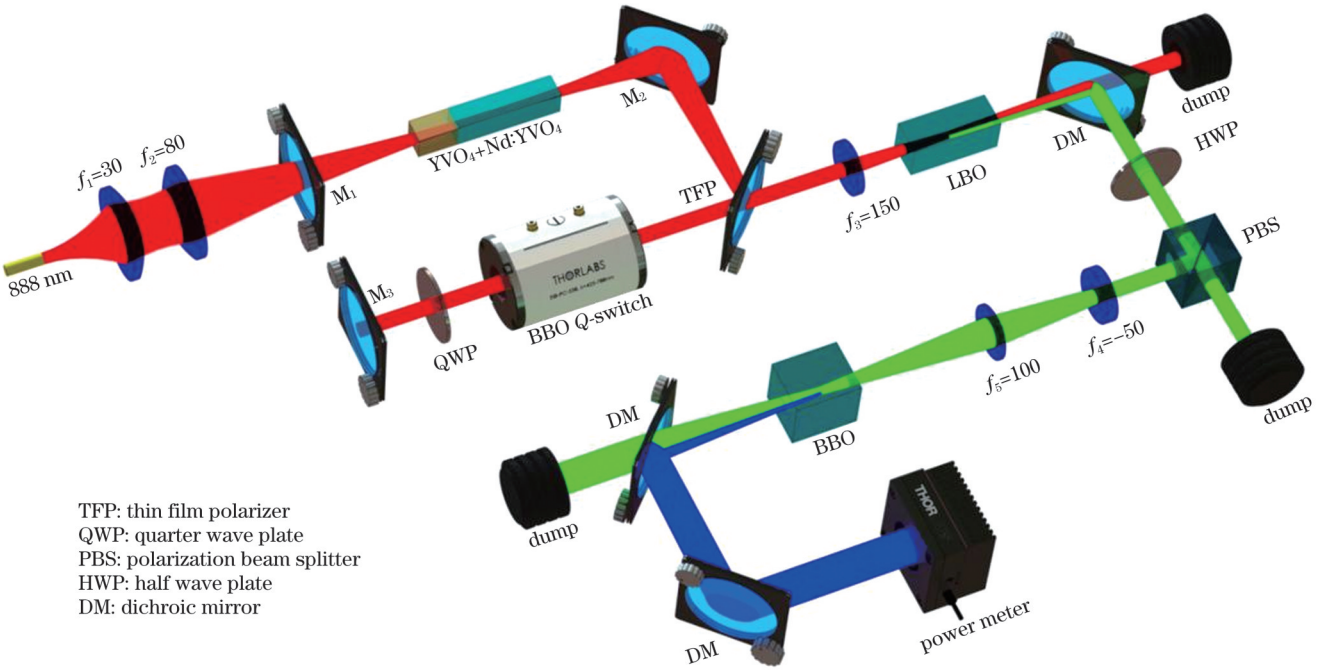

图1 全固态266 nm深紫外激光器的实验装置图

Fig. 1 Experimental setup of the all-solid-state 266 nm DUV laser

全固态 Nd∶YVO_4近红外激光器作为产生四次谐波 266 nm 深紫外激光的基频光源，其谐振腔采用平凸驻波腔结构。为有效减缓增益晶体的量子亏损热效应，选用中心波长为 888 nm 的半导体激光器作为泵浦源，其输出光束通过焦距（f_1、f_2）分别为 30 mm 和 80 mm 的透镜组成的望远镜系统准直聚焦到增益介质 Nd∶YVO_4晶体上，实现泵浦激光与谐振腔的模式匹配。为了减缓晶体前端面热效应，增益晶体采用尺寸为 3 mm×3 mm×（3+20）mm 的键合 YVO_4+Nd∶YVO_4晶体，钕离子掺杂原子数分数为 0.8%，晶体两端均镀有 888/1064 nm 减反膜，并用循环水系统进行冷却。输入镜 M_1使用的是曲率半径为 700 mm 的平凸镜且镀有 888 nm 减反膜和 1064 nm 高反膜；腔镜 M_2为镀有 888 nm 减反膜和 1064 nm 高反膜的平面镜；腔镜 M_3采用的是镀有 1064 nm 高反膜的平面镜，并将 45° 1064 nm 薄膜偏振片（TFP）作为谐振腔的输出镜。在 TFP 与 M_3之间插入 BBO 电光晶体（BBO Q-switch）和四分之一波片（QWP），通过调节施加于电光晶体两端的电压来改变输出镜 TFP 的透射率，最终在 3.6 kV 的高压加载下实现了稳定的腔倒空运转，由 TFP 输出水平偏振的 1064 nm 基频光源。

1064 nm 激光经透镜 f_3（焦距为 150 mm）整形聚焦到二倍频晶体中产生二次谐波 532 nm 绿光，为获得较小的走离效应以及较高的倍频效率，二倍频晶体选用Ⅰ类非临界相位匹配的 LBO 晶体，晶体切割角 $\theta=90°$，$\varphi=0°$，尺寸为 3 mm×3 mm×20 mm，并且晶体双端面均镀 1064/532 nm 减反膜。实验中将 LBO 晶体放置于内含加热器和温度传感器的紫铜恒温炉中，并加热至 148.5 ℃，控温精度为±0.01 ℃。

532 nm 激光经 1064/532 nm 二色镜（DM）与 1064 nm 基频光分离后，利用透镜 f_4与 f_5（焦距分别为 −50 mm，100 mm）组成的望远镜系统对其进行扩束整形，并注入 BBO 晶体中进行四倍频，同时为了方便实验，将半波片（HWP）与偏振分光棱镜（PBS）配合使用来调节进入 BBO 晶体中 532 nm 激光功率的大小。在保证 266 nm 深紫外激光透射率的同时，为提高膜系的损伤阈值，BBO 晶体双端镀 266 nm 紫外保护膜，尺寸为 5 mm×5 mm×4 mm，采用Ⅰ类临界相位匹配方式，其切割角 $\theta=47.7°$，$\varphi=0°$（室温）。实验中，为了对 BBO 晶体角度以及温度进行精确调节，同样将其放置于紫铜炉加热装置，然后固定在三维旋转台。最后，产生的 266 nm 深紫外激光经过两个 532/266 nm DM 滤除 532 nm 激光残余光束，用功率计（S425C，Thorlabs，美国）测量其输出功率。

3 实验结果与分析

通过优化高功率泵浦注入下 Nd∶YVO_4激光器腔长参数，在 888 nm 泵浦光功率为 65 W 时，获得平均功率为 26 W、重复频率为 20 kHz、单脉冲宽度为 5 ns 的 1064 nm 高峰值功率窄脉冲激光输出；1064 nm 基频红外光经 LBO 晶体二倍频后，最终获得最高功率为 16 W 的 532 nm 激光，红外到绿光转换效率达 61.5%，经光束轮廓仪（BC106N-VIS，Thorlabs，美国）测试其光束质量因子 $M^2=1.2$，且 3 h 内功率稳定性优于 2%（均方根，RMS）。

在腔倒空全固态 Nd∶YVO_4激光器以及其二倍频系统优化好之后，为了研究不同匹配温度的 BBO 晶体在四倍频过程中晶体内部的温度变化情况及其对深紫外激光输出功率的影响，在晶体匹配温度为 60 ℃、120 ℃、180 ℃时，分别记录了功率 4 W、8 W、12 W 和 16 W 的绿光注入下所获得的 266 nm 深紫外激光的输出功率随晶体加热装置温度的变化曲线，如图 2 所示。值得注意的是，本文是在紫外激光的输出功率极低（0.05 W）下，通过精确调节 BBO 晶体的角度来实现晶体匹配温度的转变。

从图 2（a）中可以看出，当晶体匹配温度为 60 ℃时，随着绿光输入功率由 0 W 逐渐增加到 4 W、8 W、12 W 以及 16 W，实现最佳功率的紫外光输出时晶体加热装置温度不断降低，由 60 ℃依次降低为 59 ℃、53 ℃、45 ℃、36 ℃。也就是说，随着绿光输入功率的增加，BBO 晶体内部产热量也相应增加，所以晶体加热装置温度需要连续向低温方向扫描来维持晶体匹配温度不变以满足最佳功率的紫外光输出时的相位匹配条件。在 532 nm 激光的输入功率为 16 W 时，加热装置温度偏移量 ΔT 达到 24 ℃，此时 266 nm 激光的最大输出功率为 2.25 W，将晶体匹配温度逐步提升至 120 ℃以及 180 ℃，BBO 晶体加热装置温度偏移量 ΔT 逐渐降低，由 24 ℃减小到 22 ℃[图 2（b）]再到 20 ℃[图 2（c）]，266 nm 激光的最大输出功率也由 2.25 W 增加为 2.39 W 以及 2.56 W。由于晶体与加热装置以及加热装置与外界之间的热传导受温度的影响可以忽略[20-21]，因此加热装置温度偏移量 ΔT 随匹配温度的升高而降低的原因可直接归结为晶体自身产热的降低。这一结果也表明提高晶体匹配温度可以在有效减缓晶体内部热效应的同时，改善深紫外激光功率输出。尽管在 180 ℃的基础上继续提高晶体的温度可能会获得更高的功率，但是考虑到实际工作中进一步控温的难度以及温控装置的稳定性，最终将晶体匹配温度控制在 180 ℃以下。

图 2（d）为不同匹配温度的晶体四倍频时其加热装置的温度偏移量 ΔT 随绿光输入功率的变化曲线，具体结果如表 1 所示。

当绿光输入功率低于 4 W，BBO 晶体的匹配温度对四倍频 266 nm 激光的输出功率基本没有影响并且实现最佳功率的紫外光输出时，其加热装置温度偏移量 ΔT 也趋于一致；当绿光输入功率大于 8 W，BBO 晶

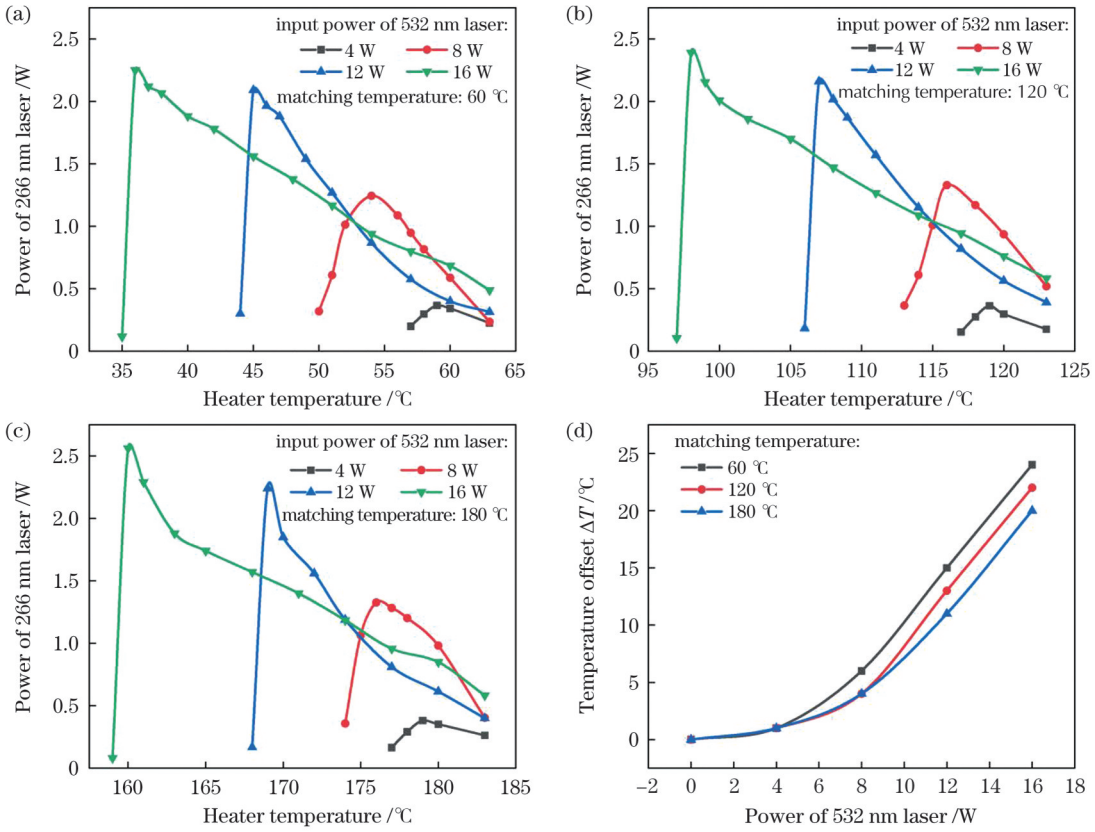

图 2　不同匹配温度时，不同功率的绿光注入下 266 nm 深紫外激光的输出功率随晶体加热装置温度的变化。(a) 60 ℃；(b) 120 ℃；(c) 180 ℃；(d) 不同匹配温度的晶体四倍频时，加热装置的温度偏移量 ΔT 随绿光输入功率的变化

Fig. 2　Output power of 266 nm DUV laser under different green light injection powers varies with the temperature of the crystal heater at different phase matching temperatures. (a) 60 ℃; (b) 120 ℃; (c) 180 ℃; (d) temperature offset ΔT of the crystal heater varies with the input power of 532 nm laser at different phase matching temperatures of the crystal

表 1　不同匹配温度的晶体四倍频时加热装置的温度偏移量 ΔT

Table 1　Temperature offset ΔT of the crystal heater at different phase matching temperatures of the crystal

Matching temperature /℃	Temperature offset /℃			
	P_{532}=4 W	P_{532}=8 W	P_{532}=12 W	P_{532}=16 W
60	$\Delta T=1(P_{266}=0.32$ W)	$\Delta T=6(P_{266}=1.24$ W)	$\Delta T=15(P_{266}=2.09$ W)	$\Delta T=24(P_{266}=2.25$ W)
120	$\Delta T=1(P_{266}=0.36$ W)	$\Delta T=4(P_{266}=1.33$ W)	$\Delta T=13(P_{266}=2.16$ W)	$\Delta T=22(P_{266}=2.39$ W)
180	$\Delta T=1(P_{266}=0.38$ W)	$\Delta T=4(P_{266}=1.37$ W)	$\Delta T=11(P_{266}=2.25$ W)	$\Delta T=20(P_{266}=2.56$ W)

Notes: P_{532} is the input power value of the 532 nm laser, and P_{266} is the maximum output power value that the 266 nm laser can achieve at the corresponding green light input power.

体的匹配温度越高，加热装置温度偏移量 ΔT 越小，266 nm 激光的输出功率才能越高。因此，建立合适的理论模型探究四倍频过程中 BBO 晶体产热的根本原因并且对不同匹配温度的晶体的热特性进行理论研究是很有必要的。

为了对不同匹配温度下深紫外 266 nm 激光的输出特性有更好的了解，在晶体匹配温度为 60 ℃时，利用紫外光束轮廓仪(BP209-VIS，Thorlabs，美国)对获得的 266 nm 深紫外激光的光束质量进行测量后发现，x 以及 y 方向上的光束质量因子分别为 1.66(M_x^2)和 1.68(M_y^2)，如图 3(a)所示。并且，记录了此时所获得的 266 nm 深紫外激光的功率稳定性，如图 3(b)所示，266 nm 激光在 1 h 内功率稳定性优于 4.7%(RMS)。将晶体匹配温度提升至 180 ℃后，x 和 y 方向上的光束质量因子可以分别提升为 1.62 以及 1.52，功率稳定性则可以优于 4.0%(RMS)。从图 3 可以看出，提升匹配温度在一定程度上还可以改善产生的深紫外激光的光束质量以及其长期稳定性。

最后，利用光谱仪(Maya2000 Pro，Ocean Insight，美国)测得该紫外脉冲激光中心波长为 265.7 nm，谱线宽度为 0.354 nm，如图 4(a)所示。利用光电探测器(DET10A2，Thorlabs，美国)测得 266 nm 深紫外激光在重复频率为 20 kHz 时，单脉冲宽度为 4 ns，脉冲序列均匀且稳定，如图 4(b)所示。

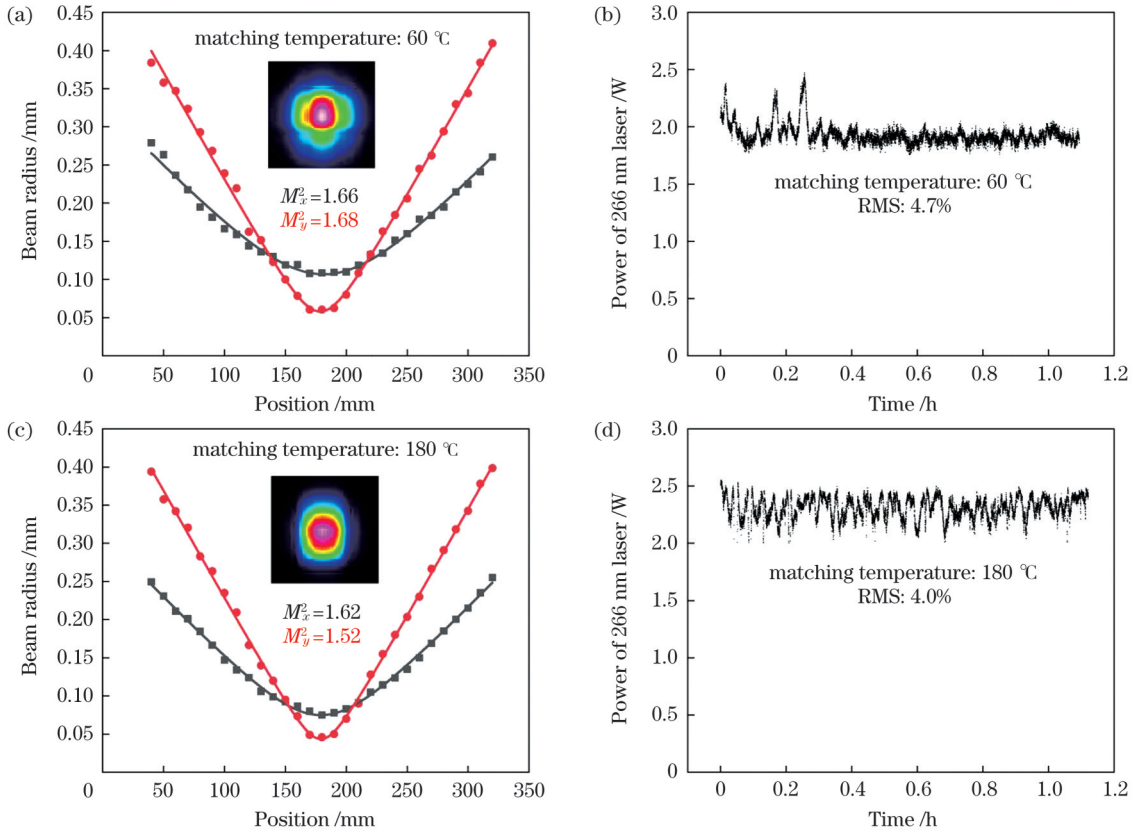

图 3 实验结果。晶体匹配温度为 60 ℃时，深紫外 266 nm 激光的(a)光束质量和(b)功率稳定性；晶体匹配温度为 180 ℃时，深紫外 266 nm 激光的(c)光束质量和(d)功率稳定性

Fig. 3 Experimental results. (a) Beam quality and (b) power stability of the DUV 266 nm laser when phase matching temperature of the crystal is 60 ℃; (c) beam quality and (d) power stability of the DUV 266 nm laser when phase matching temperature of the crystal is 180 ℃

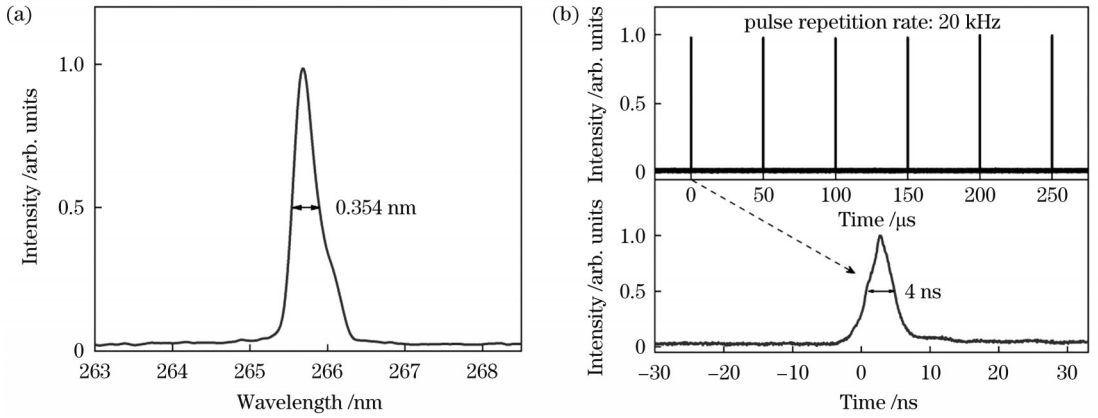

图 4 深紫外 266 nm 激光的输出特性。(a)谱宽；(b)脉宽

Fig. 4 Output characteristics of the DUV 266 nm laser. (a) Spectral width; (b) pulse width

4 热特性理论研究

上述实验表明，四倍频过程中 BBO 晶体内部产热严重，已知 BBO 晶体能带间隙为 6.56 eV，而 266 nm、532 nm 激光的单光子能量分别为 4.66 eV 以及 2.33 eV，理论上该晶体不存在对 266 nm、532 nm 激光的单光子吸收，仅因晶体含有的少量杂质会引入新的能级结构从而导致较弱的线性吸收，因此引起晶体内部产热的主导因素为 266 nm 激光的双光子吸收。在考虑四倍频过程中 BBO 晶体对 266 nm 激光双光子吸收的同时，假设双光子吸收会引起晶体内部动态色心缺陷的形成[16]，控制紫外光强度和色心密度的方程分别为

$$\frac{\mathrm{d}I_{266}(x,y,z)}{\mathrm{d}z}=-\sigma N(\mathrm{t})I_{266}(x,y,z)-\beta_{\mathrm{TPA}}I_{266}^2(x,y,z), \tag{1}$$

$$\frac{\mathrm{d}N(t)}{\mathrm{d}t}=\frac{\beta_{\mathrm{TPA}}I_{266}^2(x,y,z)}{2\hbar\omega_{266}}-\frac{N(t)\eta_{\mathrm{b}}\sigma I_{266}(x,y,z)}{\hbar\omega_{266}}, \tag{2}$$

式中：$I_{266}(x,y,z)$为 266 nm 激光功率密度分布；β_{TPA}为 BBO 晶体对于 266 nm 激光的双光子吸收系数；ω_{266}为 266 nm 激光光子角频率；σ为色心缺陷吸收截面；η_{b}为色心缺陷漂白效率；$N(t)$为含时色心密度，当 $t=0$ 时，有 $N(t)=0$，因此可以得到

$$\frac{\mathrm{d}I_{266}(x,y,z)}{\mathrm{d}z}=-\beta_{\mathrm{NLA}}I_{266}^{2}(x,y,z),\tag{3}$$

$$\beta_{\mathrm{NLA}}=\beta_{\mathrm{TPA}}+\frac{\beta_{\mathrm{TPA}}}{2\eta_{\mathrm{b}}}\left\{1-\exp\left[-\frac{\eta_{\mathrm{b}}\sigma}{\hbar\omega_{266}}I_{266}(x,y,z)t\right]\right\}。\tag{4}$$

在一定的紫外功率下，BBO 晶体内部由双光子吸收以及伴随其一同产生的色心缺陷共同引起的一系列非线性吸收损耗可以由非线性吸收系数β_{NLA}来衡量，其表达式如式(4)所示。BBO 晶体因非线性吸收而产热的同时，在固定的外部控温条件下，会在晶体内部形成一个相对稳定的温度场分布，其遵守稳态热传导泊松方程，

$$\frac{\partial^{2}T(x,y,z)}{\partial x^{2}}+\frac{\partial^{2}T(x,y,z)}{\partial y^{2}}+\frac{\partial^{2}T(x,y,z)}{\partial z^{2}}+\frac{q(x,y,z)}{k}=0,\tag{5}$$

式中：$T(x,y,z)$为晶体内部温度分布；k为导热系数，假定该系数在晶体内部呈各向同性，可取垂直与平行光轴方向导热系数的平均值；$q(x,y,z)$表示晶体内部单位时间单位体积的热源产热量，在考虑晶体对 266 nm 激光的非线性吸收的同时，也将晶体对 266 nm、532 nm 激光的少量线性吸收考虑在内，其表达式为

$$q(x,y,z)=\alpha_{532}I_{532}(x,y,z)+\alpha_{266}I_{266}(x,y,z)+\beta_{\mathrm{NLA}}I_{266}^{2}(x,y,z),\tag{6}$$

式中：α_{532}、α_{266}分别为 BBO 晶体对于 532 nm 以及 266 nm 激光的线性吸收系数；$I_{532}(x,y,z)$为 532 nm 激光功率密度分布。由于采用四倍频晶体较短，绿光以及紫外光在晶体纵向功率密度变化不大且晶体侧端控温，所以晶体纵向的温度变化可以忽略，式(5)可表示为

$$\frac{\partial^{2}T(x,y)}{\partial x^{2}}+\frac{\partial^{2}T(x,y)}{\partial y^{2}}+\frac{\alpha_{532}I_{532}(x,y)+\alpha_{266}I_{266}(x,y)+\beta_{\mathrm{NLA}}I_{266}^{2}(x,y)}{k}=0。\tag{7}$$

假设 BBO 晶体横截面积为$(a\times b)$ mm^2，晶体侧端由加热装置恒定控温至 T_0，以晶体任一顶点为原点构建直角坐标系，在 BBO 晶体导热过程中，其遵循第一类边界条件，有

$$T(0,y)=T(a,y)=T(x,0)=T(x,b)=T_{0}。\tag{8}$$

当入射的 532 nm 绿光以及产生的 266 nm 深紫外激光沿晶体中心传播，根据边界条件，可以给出由两个本征函数构成的晶体温度场的通解，

$$T(x,y)=\sum_{m=1}^{\infty}\sum_{n=1}^{\infty}A_{mn}\sin\left(\frac{n\pi}{a}x\right)\sin\left(\frac{m\pi}{b}y\right)+T_{0},\tag{9}$$

式中：A_{mn}为待定系数，将式(9)代入热传导方程式(7)中并利用三角函数的正交性就可以得到待定系数的表达式

$$A_{mn}=4\Big/\left\{abk\left[\left(\frac{n\pi}{a}\right)^{2}+\left(\frac{m\pi}{b}\right)^{2}\right]\right\}\int_{0}^{a}\int_{0}^{b}\left[\alpha_{532}I_{532}(x,y)+\alpha_{266}I_{266}(x,y)+\beta_{\mathrm{NLA}}I_{266}^{2}(x,y)\right]\cdot\sin\left(\frac{n\pi}{a}x\right)\sin\left(\frac{m\pi}{b}y\right)\mathrm{d}x\mathrm{d}y。\tag{10}$$

假设绿光以及紫外激光分布均为 TEM_{00} 模高斯光束，其光强分布的表达式为：

$$I_{532}(x,y)=\frac{2P_{532}}{\pi\omega_{0}^{2}}\exp\left\{-2\left[\left(x-\frac{a}{2}\right)^{2}+\left(y-\frac{b}{2}\right)^{2}\right]\Big/\omega_{0}^{2}\right\},\tag{11}$$

$$I_{266}(x,y)=\frac{2P_{266}}{\pi\left(\omega_{0}/\sqrt{2}\right)^{2}}\exp\left\{-2\left[\left(x-\frac{a}{2}\right)^{2}+\left(y-\frac{b}{2}\right)^{2}\right]\Big/\left(\omega_{0}/\sqrt{2}\right)^{2}\right\},\tag{12}$$

式中 P_{532}、P_{266}分别为绿光以及紫外光的功率；ω_0为绿光在 BBO 晶体中的束腰半径。由于绿光以及紫外光为高斯光束且沿晶体中心传播，四倍频过程中晶体中心处光强最强，同时产热也最多，故而晶体内部温度呈梯度分布且各处相位失配情况也不同，此时满足晶体中心处的相位匹配条件即可获得最高的转换效率。因此四倍频实验所获得的不同功率的绿光注入下，实现最佳功率的紫外光输出时晶体加热装置的温度偏移量 ΔT 即为晶体中心处产热量，晶体中心温度分布满足：

$$T(a/2,\ b/2)=\Delta T+T_{0},\tag{13}$$

在本文计算中，晶体尺寸 a、b 均为 5 mm，绿光束腰半径 ω_0 为 350 μm，导热系数 k 为 1.4 W/(m·K)，晶体对 266 nm 激光以及 532 nm 激光的线性吸收系数 α_{266}、α_{532} 均为 0.01 cm^{-1}，色心缺陷吸收截面 $\sigma=8\times10^{-17}$ cm^2，并且考虑每次取值时色心密度均达到稳态，即时间 t 取 ∞。利用有限元分析软件根据式(9)～(13)，就可以对影响晶体产热的不同匹配温度、不同紫外激光功率下的非线性吸收系数 β_{NLA} 以及归一化色心密度进行理论求解，计算结果如图 5 所示。

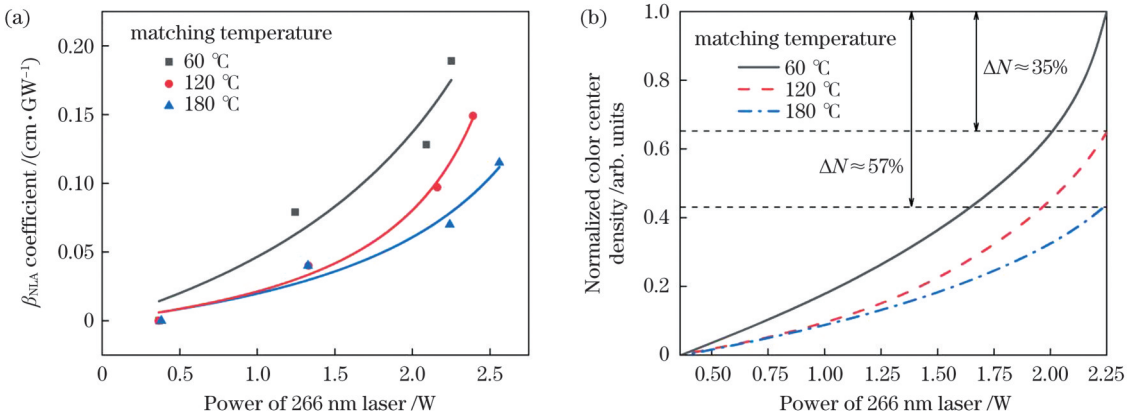

图 5 不同匹配温度下，(a)非线性吸收系数β_{NLA}和(b)归一化色心密度随 266 nm 激光功率的变化

Fig. 5 (a) Nonlinear absorption coefficient β_{NLA} and (b) normalized color center density varies with the power of 266 nm DUV laser at different phase matching temperatures

从图 5(a)可以看出，当晶体匹配温度为 60 ℃时，随着 266 nm 深紫外激光功率由 0.32 W 逐渐增加到 1.24 W、2.09 W 以及 2.25 W，拟合得到的非线性吸收系数β_{NLA}也在不断增大，由 0 依次增大为 0.079、0.128、0.189 cm/GW，但是该非线性吸收系数却随着晶体匹配温度的升高而降低，尤其是当晶体匹配温度为 180 ℃、266 nm 激光功率为 2.25 W 时，非线性吸收系数β_{NLA}仅为 0.07 cm/GW。同时图 5(b)表明，266 nm 激光功率越高，不同匹配温度的晶体产生的色心密度的差距越大，在 266 nm 激光功率均为 2.25 W 时，相较于 60 ℃，匹配温度为 120 ℃与 180 ℃的晶体其内部色心密度分别降低了近 35% 以及 57%。该研究结果表明四倍频过程中提升晶体匹配温度可以在减小晶体非线性吸收系数以及色心密度的基础上，降低晶体内部产热量从而改善深紫外激光功率输出，验证了本文的实验结果。

5 结 论

本文通过搭建 1064 nm 近红外光四倍频产生 266 nm 深紫外激光的实验装置，深入研究了四倍频过程中不同匹配温度下的 BBO 晶体内部温升情况及其对 266 nm 深紫外激光输出功率的影响。通过研究，发现在四倍频过程中 BBO 晶体内部产热极为严重，而提高晶体匹配温度可以在有效减缓晶体内部热效应的同时，提高深紫外激光功率输出，最终将晶体匹配温度提高至 180 ℃，获得了平均功率为 2.56 W、重复频率为 20 kHz、脉冲宽度为 4 ns 的 266 nm 深紫外脉冲激光，绿光到紫外转换效率为 16%。同时，通过分析 BBO 晶体的产热机理，合理解释了四倍频过程中晶体温升的根本原因，并且在构建非线性吸收理论模型从而获得晶体温度场分布的基础上，进一步对影响晶体产热的不同匹配温度、不同紫外激光功率下的非线性吸收系数和归一化色心密度进行计算。结果显示，非线性吸收系数与紫外激光功率强度呈正相关，并且在 266 nm 激光功率均为 2.25 W 时，相较于 60 ℃，匹配温度为 180 ℃的晶体其非线性吸收系数减小了近 63%，色心密度也降低了 57%，该研究结果对实现高功率的 266 nm 深紫外激光的输出具有重要意义。

参 考 文 献

[1] 石晶晶，李孟凡，胡亚东，等. 紫外可见偏振成像光谱仪的光谱定标与匹配方法[J]. 光学学报，2022，42(9)：0930002.
Shi J J，Li M F，Hu Y D，et al. Spectral calibration and matching method for ultraviolet-visible polarization imaging spectrometer[J]. Acta Optica Sinica，2022，42(9)：0930002.

[2] 程立，吴超，陈燕，等. LCP 挠性覆铜板紫外激光去膜工艺分析[J]. 激光与光电子学进展，2022，59(17)：1714007.
Cheng L，Wu C，Chen Y，et al. Removal of liquid crystal polymer flexible copper-clad laminates using ultraviolet laser[J]. Laser & Optoelectronics Progress，2022，59(17)：1714007.

[3] Di Y F，Zuo Z，Peng D W，et al. Dual-comb spectroscopy from the ultraviolet to mid-infrared region based on high-order harmonic generation[J]. Photonics Research，2023，11(8)：1373-1381.

[4] Wang L R，Zhai N X，Liu L J，et al. High-average-power 266 nm generation with a $KBe_2BO_3F_2$ prism-coupled device[J]. Optics Express，2014，22(22)：27086-27093.

[5] Wang L R，Wang G L，Zhang X，et al. Generation of ultraviolet radiation at 266 nm with $RbBe_2BO_3F_2$ crystal[J]. Chinese Physics Letters，2012，29(6)：064203.

[6] Kojima T，Konno S，Fujikawa S，et al. 20-W ultraviolet-beam generation by fourth-harmonic generation of an all-solid-state laser [J]. Optics Letters，2000，25(1)：58-60.

[7] Nishioka M，Fukumoto S，Kawamura F，et al. Improvement of laser-induced damage tolerance in $CsLiB_6O_{10}$ for high-power UV laser source[C] //Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)，June 1-6，2003，Baltimore，Maryland，United States. Washington，DC：OSA，2003：CTuF.

[8] 俞航航，张志韬，玄洪文. 基于国产商用 CLBO 晶体的高转换效率、高功率深紫外 266 nm 激光[J]. 中国激光，2024，51(7)：0701020.
Yu H H，Zhang Z T，Xuan H W. High-conversion-efficiency high-power deep-ultraviolet 266 nm laser based on domestic commercially available CLBO crystal[J]. Chinese Journal of Lasers，2024，51(7)：0701020.

[9] Takachiho K，Yoshimura M，Fukushima Y，et al. Al doping of $CsLiB_6O_{10}$ for high resistance to ultraviolet-induced degradation[J]. Applied Physics Express，2013，6(2)：022701.

[10] Orii Y，Kohno K，Tanaka H，et al. Minimization of the response time of a 20 W deep-ultraviolet light at 266 nm during intermittent

operation[J]. Optics Continuum, 2022, 1(11): 2274-2286.
[11] Orii Y, Kohno K, Tanaka H, et al. Stable 10, 000-hour operation of 20 W deep ultraviolet laser generation at 266 nm[J]. Optics Express, 2022, 30(7): 11797-11808.
[12] Liu Q, Yan X P, Fu X, et al. High power all-solid-state fourth harmonic generation of 266 nm at the pulse repetition rate of 100 kHz[J]. Laser Physics Letters, 2009, 6(3): 203-206.
[13] Rao A S, Chaitanya N A, Samanta G K. High-power, high repetition-rate, ultrafast fibre laser based source of DUV radiation at 266 nm[J]. OSA Continuum, 2019, 2(1): 99-106.
[14] Wen N, Wang N, Zong N, et al. High-energy, hundred-picosecond pulsed 266 nm mid-ultraviolet generation by a Barium borate crystal[J]. High Power Laser Science and Engineering, 2023, 11: e31.
[15] Kumar S C, Casals J C, Wei J X, et al. High-power, high-repetition-rate performance characteristics of β-BaB_2O_4 for single-pass picosecond ultraviolet generation at 266 nm[J]. Optics Express, 2015, 23(21): 28091-28103.
[16] Marshall C D, Payne S A, Henesian M A, et al. Ultraviolet-induced transient absorption in potassium dihydrogen phosphate and its influence on frequency conversion[J]. Journal of the Optical Society of America B, 1994, 11(5): 774-785.
[17] Takahashi M, Osada A, Dergachev A, et al. Effects of pulse rate and temperature on nonlinear absorption of pulsed 262-nm laser light in β-BaB_2O_4[J]. Japanese Journal of Applied Physics, 2010, 49(8R): 080211.
[18] Yap Y K, Deki K, Kitatochi N, et al. Alleviation of thermally induced phase mismatch in $CsLiB_6O_{10}$ crystal by means of temperature-profile compensation[J]. Optics Letters, 1998, 23(13): 1016-1018.
[19] Takahashi M, Osada A, Dergachev A, et al. Improved fourth harmonic generation in β -BaB_2O_4 by tight elliptical focusing perpendicular to walk-off plane[J]. Journal of Crystal Growth, 2011, 318(1): 606-609.
[20] 姚建铨, 徐德刚. 全固态激光及非线性光学频率变换技术[M]. 北京: 科学出版社, 2007: 232-246.
Yao J Q, Xu D G. All solid state laser and nonlinear optical frequency conversion technology[M]. Beijing: Science Press, 2007: 232-246.
[21] 姚建铨, 徐德刚. 高功率激光倍频过程的热效应分析[J]. 量子电子学报, 2005, 22(4): 482-487, 481.
Yao J Q, Xu D G. Thermal effect analysis in the process of high power frequency doubling[J]. Chinese Journal of Quantum Electronics, 2005, 22(4): 482-487, 481.

Thermal Characteristics of 266 nm DUV Laser Generated by BBO Crystal

Wang Ziwen[1], Cao Xuechen[1], Zhang Yanlin[1], Cheng Donglin[1], Jin Pixian[1,2], Lu Huadong[1,2*]

[1]*State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, Institute of Opto-Electronics, Shanxi University, Taiyuan* 030006, *Shanxi, China*;

[2]*Collaborative Innovation Center for Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan* 030006, *Shanxi, China*

Abstract

Objective All-solid-state high-power deep ultraviolet (DUV) 266 nm lasers are widely employed in various fields, including Raman spectroscopy, photo-biological imaging, integrated circuit etching, and precision micromachining, owing to their compact structure, high single-photon energy, and good long-term stability. Thus far, the fourth harmonic generation (FHG) of a 1064 nm laser based on nonlinear crystals, including cesium lithium borate (CLBO) and barium metaborate (BBO), is the most widely adopted method for generating a DUV 266 nm laser. However, its significant nonlinear absorption results in a large temperature gradient inside the crystal, which prevents the complete phase matching of the entire crystal. Consequently, the output power of the DUV 266 nm laser saturates easily in experiments. Although many methods for alleviating nonlinear absorption and eliminating power saturation have been devised, one must comprehensively investigate the thermal characteristics of BBO crystals when they are used to generate high-power DUV 266 nm lasers. Therefore, in this study, the effects of the phase-matching temperature of BBO crystal on heat generation inside the crystal and the output power of a 266 nm laser are first investigated during FHG. Experimental data show that an increase in the phase-matching temperature can effectively alleviate the thermal effect caused by nonlinear absorption inside the crystal, thus improving the output power of the 266 nm laser. In particular, when the phase-matching temperature of the BBO crystal increases from 60 ℃ to 180 ℃, the maximum output power of the 266 nm laser increases from 2.25 W to 2.56 W. Second, a theoretical model of nonlinear absorption is established to explain the experimental results, and the nonlinear absorption coefficient (β_{NLA}) and normalized color center density at different phase-matching temperatures that affect heat generation in the crystal are calculated using the experimental data. This study provides an instructive reference for generating high-power 266 nm DUV lasers.

Methods To achieve a 266 nm DUV laser, an all-solid-state cavity-dumping Nd∶YVO_4 1064 nm laser with an average output power, a repetition rate, and a pulse width of 26 W, 20 kHz, and 5 ns, respectively, was designed and then fabricated. Subsequently, a nonlinear LBO crystal with non-critical phase matching was employed to convert the fundamental-wave 1064 nm laser into a second-harmonic 532 nm laser, which yielded an average power of 16 W. Next, the heat generated inside the crystal during FHG was measured based on the temperature offset ΔT of the crystal heater when the optimal output power of the 266 nm DUV laser was achieved under different input powers of a 532 nm laser. Subsequently, the heat generated inside the crystal and the

output power of the 266 nm laser were compared when the phase-matching temperature of the BBO crystal was 60 ℃, 120 ℃, and 180 ℃. Simultaneously, a theoretical model of nonlinear absorption was established by analyzing the mechanism of heat generation inside the crystal during FHG, and a two-dimensional heat-conduction equation was obtained. Finally, based on experimental data, the β_{NLA} and normalized color center density at different phase-matching temperatures, which affected heat generation inside the crystal, were numerically simulated using finite-element analysis software.

Results and Discussions When the phase-matching temperature of the BBO crystal is 60 ℃, as the input power of the 532 nm laser is increased gradually from 0 W to 4, 8, 12, and 16 W to achieve the optimal output power for the 266 nm laser, the temperature of the crystal heater decreases continuously from 60 ℃ to 59 ℃, 53 ℃, 45 ℃, and 36 ℃, respectively [Fig. 2(a)]. In particular, when the 532 nm laser with a maximum power of 16 W is injected, the ΔT of the heater is 24 ℃, at which time the maximum output power of the 266 nm laser is 2.25 W. However, when the phase-matching temperature is increased gradually to 120 ℃ and 180 ℃, ΔT decreases gradually from 24 ℃ to 22 ℃ [Fig. 2(b)] and then to 20 ℃ [Fig. 2(c)], whereas the maximum output power of the 266 nm laser increases from 2.25 W to 2.39 W and 2.56 W. The experimental results show that an increase in the phase-matching temperature of the BBO crystal can effectively alleviate the thermal effect inside the crystal and improve the output power of the 266 nm DUV laser. Using the nonlinear absorption theory model and solving the heat-conduction equation of the BBO crystal, when the phase-matching temperature of the crystal is 60 ℃ and as the power of the 266 nm laser increases gradually from 0.32 W to 1.24, 2.09, and 2.25 W, the fitted β_{NLA} increases from 0 to 0.079, 0.128, and 0.189 cm/GW, respectively. However, it decreases as the phase-matching temperature of the crystal increases. In particular, when the phase-matching temperature is 180 ℃ and the power of the 266 nm laser is 2.25 W, β_{NLA} is only 0.07 cm/GW [Fig. 4(a)]. Meanwhile, compared with the case of 60 ℃, the color center density inside the crystal with phase-matching temperatures of 120 ℃ and 180 ℃ decreases by approximately 35% and 57%, respectively [Fig. 4(b)].

Conclusions An experimental setup for the generation of a 266 nm DUV laser based on the FHG of a 1064 nm laser is constructed to investigate the effects of the phase-matching temperature of BBO crystal on heat generation inside the crystal and the output power of a 266 nm laser. Results show a significant amount of heat generated inside the BBO crystal during FHG. However, increasing the phase-matching temperature of the BBO crystal can effectively alleviate the thermal effect of the crystal and improve the output power of the 266 nm DUV laser. Finally, when the phase-matching temperature of the BBO crystal is increased to 180 ℃, a 266 nm DUV pulse laser with a maximum power of 2.56 W, a repetition frequency of 20 kHz, and a pulse width of 4 ns is obtained. Based on a nonlinear absorption theoretical model, the root cause of heat generation inside the crystal during FHG is explained, and the β_{NLA} and normalized color center density at different phase-matching temperatures that affect the heat generation of the crystal are calculated. The results show that when the power of the 266 nm laser is 2.25 W, the β_{NLA} of the crystal with a phase-matching temperature of 180 ℃ is reduced by approximately 63% and the color center density is reduced by 57% compared with the results based on 60 ℃. Increasing the phase-matching temperature of the BBO crystal is shown to reduce the heat generated inside the crystal during FHG via a reduction in the β_{NLA} and color center density of the crystal, thus improving the output power of the 266 nm DUV laser, which supports the experimental results of this study.

Key words 266 nm deep ultraviolet laser; nonlinear absorption; thermal effect; phase-matching temperature; high power; barium metaborate