

文章编号: 0258-7025(2009)07-1619-06

深紫外全固态激光源

许祖彦

(中国科学院理化技术研究所 中国科学院功能晶体与激光技术重点实验室, 北京 100190)

摘要 深紫外(DUV)全固态激光(DPL)源,指输出波长短于 200 nm 的固体激光,它易于实用化与精密化,是一种新型激光源。综述了它的历史、现状、发展及应用。

关键词 全固态激光; 深紫外; KBBF 晶体

中图分类号 O437 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL20093607.1619

Deep-Ultraviolet Diode-Pumped Solid-State Laser

Xu Zuyan

(Key Laboratory of Functional Crystals and Laser Technology, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

Abstract Deep-ultraviolet (DUV) diode-pumped solid-state laser (DPL) is a novel coherent light source, which is meant to the solid-state laser with the wavelength below 200 nm. DUV-DPL is well known for its precision and application performance. Its history, current, development and applications of DUV-DPL are introduced in detail.

Key words diode-pumped solid-state laser; deep-ultraviolet; $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ (KBBF) crystal

1 引 言

深紫外(DUV)全固态激光(DPL)是指激光二极管(LD)抽运的固体激光,通过非线性光学晶体变频获得深紫外波段(波长小于 200 nm)相干辐射的技术,特别是倍频(SHG)效应产生 DUV 激光具有实用化、精密化特点,非常适合 DUV 波段科研应用,是人们期待已久的新激光源,例如 H. J. Bey^[1]认为 200 nm 是固体激光的 DUV 壁垒,其突破寄希望于新型非线性光学晶体的发现和多级光学非线性过程。

2 DUV 光源的发展历史

DUV 光源已有多年发展历史,如今非相干光源主要是同步辐射和气体放电两种,同步辐射的优势在于波段很宽(1~200 nm 以上),相对来说,能量分辨率较低(1~5 meV),光子流通量较小($10^{10} \sim 10^{12}$ photon/s),因是非相干光源,可聚焦光斑较大(3 mm × 0.5 mm),因而光子流密度不高[$10^{12} \sim 10^{14}$ photon/(s·cm²)],其运转方式为皮秒脉冲。气体放电光源主要指氦放电灯,优点是连续波运转,简

单而体积小,缺点是能量分辨率较低(1.2 meV),光子流通量小($<10^{14}$ photon/s)且波长单一(58.5 nm)。

DUV 相干光源首推准分子激光器,此种激光源自 1974 年实现横向放电激励以来,很快就走向市场,成为一代紫外/深紫外激光器主流,其中 ArF 和 F₂ 两种能产生 DUV 相干辐射(波长分别为 193 nm 和 157 nm),具有高平均功率(W~kW),高脉冲能量(mJ~100 J),相对结构简单和电激励、效率高的优势,但由于横向气体放电运转,其光束质量差、稳定性也不好、可调谐范围很小,并且还有技术复杂、气体有毒、一次充气寿命有限等缺点,实用化与精密化较困难。通过气体高次谐波和四波混频技术产生的 DUV 相干辐射,优点是波长较短(70~200 nm,有短到 2 nm 的),但效率很低,输出能量很小,光束质量也不好,目前使用不多。DUV 自由电子激光器是一种输出特性很好的新一代激光源,是同步辐射向相干输出发展的必然结果,其巨大优势在于可调范围很宽(可短到 X 光)且功率大,缺点是体积大、造价高,且目前技术尚不够成熟。例如自然线宽仅波长千分之一量级,其精密化调谐尚在研究中,短波

收稿日期: 2009-06-02; 收到修改稿日期: 2009-06-18

作者简介: 许祖彦(1940—),男,中国工程院院士,主要从事可调谐激光、全固态激光和光学非线性过程等方面的研究。

E-mail: zyxu@mail.ipc.ac.cn

运转技术也正在发展,还没有到提供应用阶段。表 1 列出了目前常用的同步辐射、气体放电光源与 DUV-DPL 性能的比较,可以看出,DUV-DPL 存在很大的优势:光子流通量和密度高几个量级,光谱分辨率也高,可调范围虽不如同步辐射,但已覆盖 30 nm 以上。DUV-DPL 全固化结构,体积小、效率

表 1 3 种光源特性比较*

Table 1 Properties comparing of the three source

| Source | DUV-DPL | Synchrotron radiation | Gas discharge laser |
|--|------------------------|------------------------|---------------------|
| Energy resolution /meV | ~0.26 | 1~5 | ~1.2 |
| Photon circulation /(photon/s) | $10^{14} \sim 10^{15}$ | $10^{10} \sim 10^{12}$ | ~ 10^{12} |
| Photon flux density /[photon/(s·cm ²)] | $10^{19} \sim 10^{20}$ | $10^{12} \sim 10^{14}$ | < 10^{14} |
| Wavelength range /nm | 170~210 | 1~210 | 58.5 |
| Mode of operation | ns, ps, fs pulse | ps pulse | CW |
| Detection depth /nm | ~10 (bulk effect) | 0.5~2 (skin effect) | ~0.5 (skin effect) |

* Provided by Dr. Zhou Xingjiang (Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences)

3 DUV-DPL 的突破

通过固体的受激发射过程产生 DUV 激光是很困难的,原因有二,其一是固态激光介质需光抽运激发,而抽运光波长必须短于激光波长;其二是激光波长越短,其抽运速率要求越高,这两点均难以实现。因此探索 DUV 固态激光介质的工作未见有人报道。而通过多级光学非线性过程产生 DUV 相干辐射,虽然效率不高,但相对来说较为现实^[1]。

20 世纪 80 年代末,中国科学院陈创天研究群体^[2]在相继发明 BBO 晶体(偏硼酸钡)和 LBO 晶体(三硼酸锂),可见/紫外非线性光学晶体之后,基于对硼酸盐体系材料结构与性能关系的多年研究,发明了 KBBF(氟硼酸铍钾)晶体,其短波吸收限和倍频可匹配波长近 150 nm, KBBF 族晶体,是继 KTP, BBO, LBO 之后的第 4 种可工业应用非线性光学晶体。

1994 年, F. Seifert 等^[3]使用 LBO 晶体通过和频(SFG)过程实现了 DUV 可调谐激光,但 SFG 过程复杂难以实用化。T. Kasamatsu 等^[4]研究了 BBO 晶体和频产生 193 nm 激光的技术,希望用于光刻机校准,但此种方法非但和频光路复杂,而且 BBO 晶体工作于低温并寿命很短。1994 年陈创天等^[5]在香港科技大学使用皮秒脉冲光参量放大器(可调波段 420~2000 nm),通过四次谐波过程(BBO 二倍频, KBBF 四倍频),突破了 200 nm 深紫外壁垒,达到了 184.7 nm,如图 1 所示。实验证实了 KBBF 晶体可倍频波长短(由图 1 可知, 1 μm 激光的六次谐波匹配角 θ_{PM} 仅 65.88°)、不潮解、光损伤阈值高、接收角大等优点,也

高、光束质量好、稳定性好、寿命长,很容易实用化。DUV-DPL 连续调谐宽、谱线易压窄、低重复频率至高重复频率,均可运转,这些精密化性能非常适合 DUV 精密仪器使用,因此 DUV-DPL 的出现可能推动 DUV 先进仪器进入一个快速发展时代。

充分认识到该晶体层状结构,难于切割和生长大尺寸单晶对应用带来的困难。

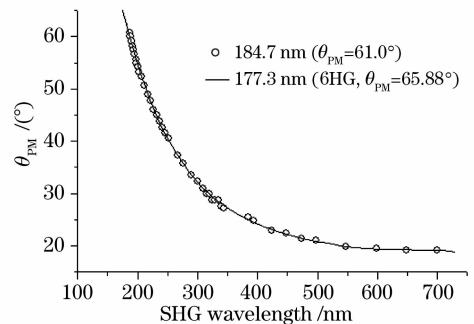


图 1 KBBF 倍频相位匹配角与波长的对应曲线

Fig. 1 SHG phase-matching angle versus wavelength for KBBF crystal

KBBF 晶体属 R32 空间群,负单轴晶体,角度匹配产生 DUV 二次谐波,匹配角在 52.5°~90°之间,范围不大,一块晶体就可能实现宽调谐^[6]。目前 KBBF

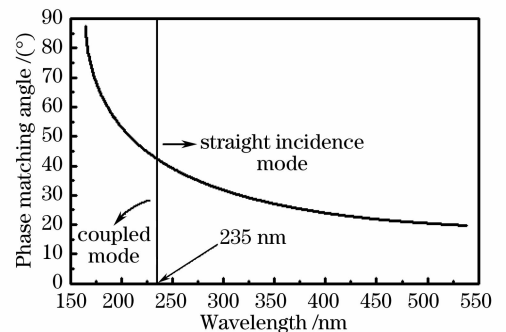


图 2 直接入射倍频 KBBF 不可能产生 DUV 激光
Fig. 2 DUV laser can not generated by frequency doubling of KBBF on the condition of straight incidence

晶体仅能生长出毫米量级厚度的单晶,其 Z 轴垂直于生长平面,菲涅尔公式计算可知,短于 470 nm 的基频光直接入射晶体生长面,达不到匹配角就会产生全反射,不能进入晶体,即是倍频波长最短仅能达 235 nm,如图 2 所示。

为此我们提出了多种专利技术克服 KBBF 晶体不能按匹配角切割的难题^[7~10],现已实施成功棱镜耦合专利,图 3 为棱镜耦合技术原理图。氟化钙棱镜按匹配角 θ_{PM} 切割,斜边与 KBBF 晶体光胶(离子键合)耦合,这样通过棱镜入射到晶体内的宽波段基频光均能实现二倍频相位匹配,且出射光基波 λ_{ω} 与谐波 $\lambda_{2\omega}$ 自动分开,便于应用。图 4 为棱镜耦合 KBBF 器件照片。图 5 是光栅耦合专利技术原理。光栅法具有非线性作用长度大的优点,适宜于长脉冲运转。

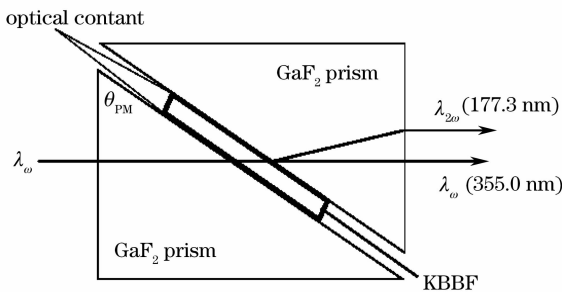


图 3 KBBF 晶体棱镜耦合技术示意图

Fig. 3 Schematic of prism-coupled KBBF technique

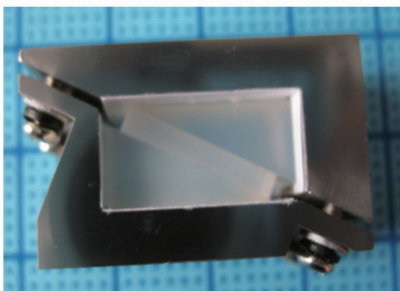


图 4 棱镜耦合器件照片

Fig. 4 Photo of a typical prism-coupled device

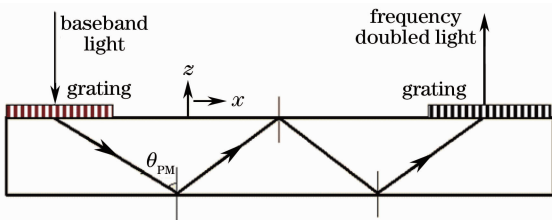


图 5 光栅耦合技术示意图

Fig. 5 Schematic of optical grating coupled technique

4 多种 DUV-DPL 的研究

变频激光器要获得应用,必须要有优良特性并

且技术成熟的基频激光源,全固态激光技术发展至今,1 μm 固定波长的 Nd 离子激光和掺钛蓝宝石可调谐激光(0.68~1 μm)均很成熟,可作为瓦级以上实用化与精密化基频抽运源。Nd 离子激光可通过 KBBF 六倍频产生强的 177.3 nm 激光,掺钛蓝宝石可通过 KBBF 四倍频产生宽调谐 DUV 激光。基于 KBBF 棱镜耦合技术,应用掺 Nd 离子全固态激光和掺钛蓝宝石激光,研究了多种 DUV-DPL,以支持各种应用仪器的需求。

图 6 为 1 μm 激光六倍频产生光路原理,其中二倍频用非临界温度匹配 LBO 晶体,以期实现无走离的高光束质量二次谐波和剩余基频光,配合高效高光束质量的三倍频产生,DUV 光(又称真空紫外光)在大气中氧等气体吸收很严重,KBBF 棱镜耦合器件和 DUV 激光光路必须置于真空室或高纯氮等保护气氛中。

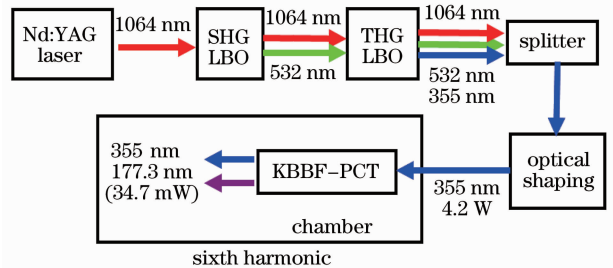


图 6 1 μm 激光六次谐波产生光路示意图

Fig. 6 Schematic of sixth harmonic generation of 1 μm laser

使用声光调 Q 的 Nd:YAG DPL(脉宽~100 ns,重复频率~10 kHz)作抽运源,实现了六次谐波稳定产生,超过 30 mW,实用化的激光器照片见图 7。

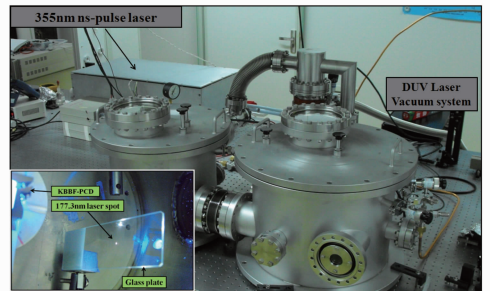


图 7 177.3 nm DPL 照片

Fig. 7 Photo of 177.3 nm DPL

使用锁模 Nd:YVO₄ 激光研究了皮秒脉冲 177.3 nm DPL,在 80 MHz 高重复频率与约 10 ps 脉宽条件下,获得 12.95 mW 以上的平均功率输出,效率可达 0.37%,如图 8 所示。提高基频脉冲激光峰值功率可显著提高转换效率达 10%以上,如图 9 所示^[11]。

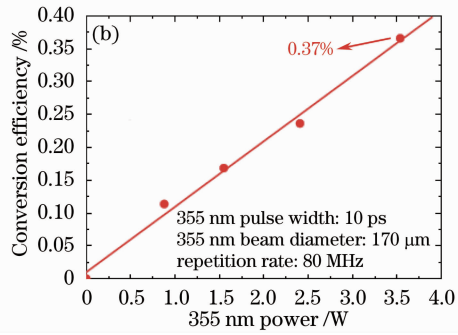
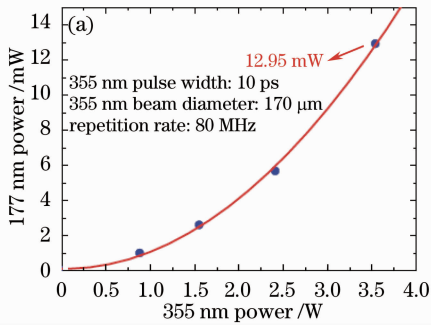


图 8 (a) 高重复频率皮秒脉冲 177.3 nm DPL 输出特性; (b) 皮秒 177.3 nm DPL 效率曲线

Fig. 8 (a) Output power at 177.3 nm versus input power at 355 nm; (b) conversion efficiency versus input power at 355 nm

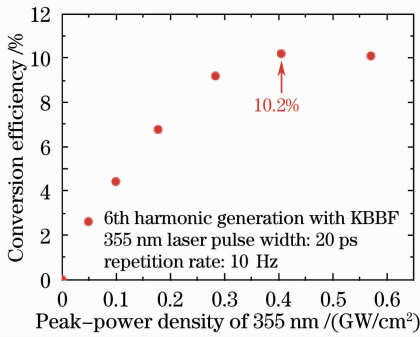


图 9 转换效率随激光峰功率变化

Fig. 9 Conversion efficiency versus peak-power density of 355 nm laser

用声光调 Q LBO 倍频的重复频率 532 nm DPL (约 10 kHz, 80 ns) 抽运掺钛蓝宝石, 产生近红外纳秒脉冲宽调谐钛宝石激光, 用 BBO 晶体倍频获得瓦级紫外高光束质量可调谐激光, 再在充气室(高纯氮气)内进行 KBBF 四倍频(如图 10 所示), 用两块棱镜耦合器件(不同棱镜切角)获得了纳秒脉冲 DUV 宽调谐激光, 输出可超过 2 mW^[12], 图 11 是二倍频紫外宽调谐 DPL 特性, 图 12 为调谐特性曲线。

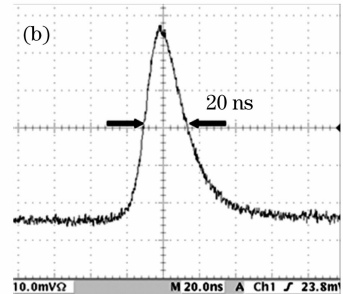
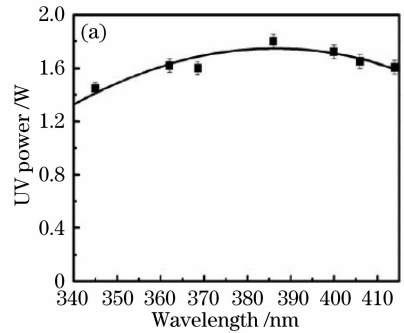


图 11 紫外宽调谐 DPL 激光输出功率与脉冲特性 (a) 输出功率; (b) 激光脉冲波形

Fig. 11 UV performance characteristics of frequency doubled Ti:sapphire laser. (a) UV output power versus wavelength; (b) temporal profile of UV pulse measured by oscillograph

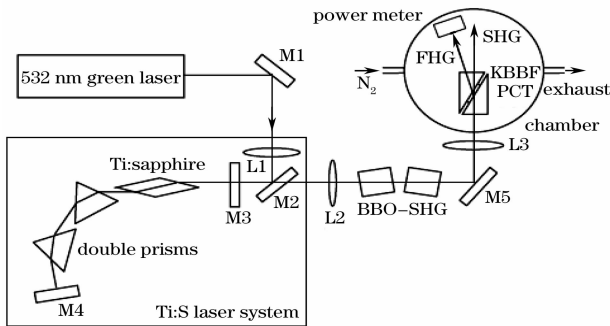


图 10 宽调谐钛宝石激光器四次谐波产生光路图

Fig. 10 Schematic of widely tunable DUV laser system

KBBF 晶体光损伤阈值很高(大于 20 GW/cm²), 厚度在毫米级, 很适合飞秒脉冲激光变频应用。我们用约 100 MHz, 100 fs 脉宽的高功率钛宝石激光

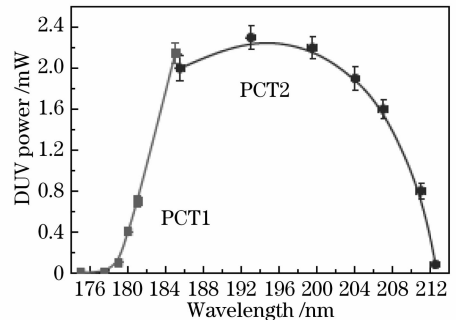


图 12 纳秒脉冲宽调谐钛宝石 DUV-DPL 输出特性曲线 Fig. 12 Output power of SHG from frequency doubled nanosecond Ti:sapphire laser versus wavelength

研究了 KBBF 晶体四次谐波产生性能,光路原理与图 10 类似,二倍频也采用 BBO 晶体,结果如图 13 所示,193.5 nm 处超过 100 mW,如图 14 所示,调谐范围拓宽到 170~200 nm 以上,170 nm 处尚有 46 μ W 以上有效输出^[13]。

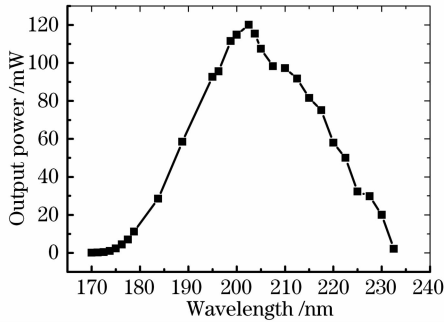


图 13 飞秒脉冲宽调谐钛宝石 DUV-DPL 输出特性曲线
Fig. 13 Output power of SHG from frequency doubled femtosecond Ti:sapphire laser versus wavelength

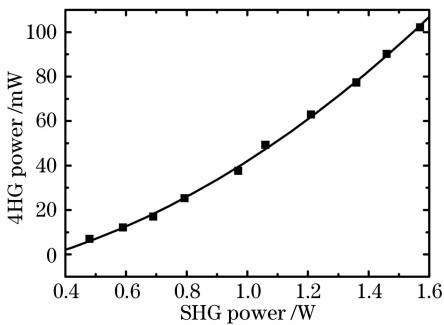


图 14 193.5 nm 输出功率曲线

Fig. 14 Output power at 193.5 nm of SHG from frequency doubled femtosecond Ti:sapphire laser

5 DUV-DPL 的应用

DUV-DPL 是全固态激光波长最短的一种,光子能量较大(~ 7 eV),作为信息光电子应用光源,一般重复频率(~ 10 kHz)和高重复频率(~ 100 MHz)运转,输出毫瓦级即可供探测仪器使用。我们和中国科学院物理研究所周兴江博士合作,利用皮秒脉冲高重复频率 177.3 nm DPL 高谱分辨和高光束质量特性,建造了一台 DUV-DPL 高能量分辨角分辨光电子能谱仪,如图 15 所示。能量分辨率达 12 meV^[14](含仪器谱宽,下同),比气体放电(20 meV)和同步辐射(30 meV)高了数倍。使用这台谱仪研究高温超导材料,发现了一些新现象,例如发现 Bi2212 超导材料具有新的电子耦合方式^[15]和电子型 NCCO 超导体色散扭折现象^[16],新的实验结果

提供了一些新的认识,如超导体能量和动量色散关系本征性认识^[17]和超导能隙和赝能隙的起源等^[18]。

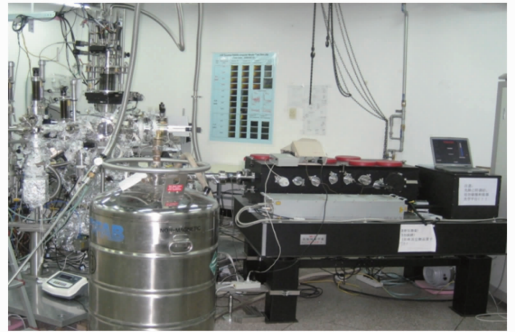


图 15 DUV-DPL 高能量分辨角分辨光电子能谱仪照片
Fig. 15 Picture of DUV-DPL based ARPES system

利用 DUV-DPL 高光子流密度和高谱分辨,作为光发射电子显微镜(PEM)光源,可望将分辨率提高数倍达到纳米量级,这对表面物理、化学和纳米光刻等研究有重要意义,应用 DUV-DPL 于激光光致发光谱仪,将为超宽带隙半导体材料的研究提供新的探测手段。这对催化科学、光电材料和生物样品的研究无疑是个好消息。

激光拉曼光谱探测信噪比比比例于使用波长的 4 次方倒数,DUV-DPL 作光源将比 1 μ m 激光抽运源提高信噪比 3 个量级。这对催化科学、光电材料和生物样品的研究无疑是个好消息。

6 结 论

DUV 波段的相干光源和应用仪器还有很多事情要做,发现新的晶体材料,发明新的 DPL 技术,扩展更短的波段,增大输出能力和实用化,精密化性能,拓展更多的应用等,如增加 177.3 nm DPL 光束偏振态调控能力和发展皮秒脉冲宽调谐 DUV-DPL,用于探测凝聚态物质电子的能量、动量和自旋,可能对电子状态进行完整的描述;研制较大脉冲能量的 DUV-DPL,有可能实现众多有机化合物的单光子吸收激发研究,高信噪比地质样品微量分析,若再用于自由电子激光的种子源,则可推动 DUV 自由电子激光倍频效应的研究和高相干水窗(2~5 nm)X 激光的产生。重复频率高光谱分辨(皮米量级)193 nm DPL 用于纳米光刻准分子激光种子源和光刻直写光源,对光刻技术将是一大改进,而将 DUV-DPL 发展到数十瓦高平均功率,取代准分子激光曝光光源,发展能量光电子应用也不是不可期待的。DUV-DPL 技术和应用刚开始,物理、化学、材料、信息、资环和生命科学都提出了很多需求。

参 考 文 献

- 1 H. J. Bey. Deep-UV applications await improved nonlinear optics[J]. *Laser Focus World*, 1998, **34**(8): 127
- 2 Chuangtian Chen, Yebin Wang, Younan Xia *et al.*. New development of nonlinear optical crystals for the ultraviolet region with molecular engineering approach[J]. *J. Appl. Phys.*, 1994, **77**(6): 2268~2272
- 3 F. Seifert, J. Ringling, F. Noack *et al.*. Generation of tunable femtosecond pulses to as low as 172.7 nm by sum-frequency mixing in lithium triborate[J]. *Opt. Lett.*, 1994, **19**(19): 1538~1540
- 4 T. Kasamatsu, M. Tsunekane, H. Sekita *et al.*. 1 pm spectrally narrowed ArF excimer laser injection locked by fourth harmonic seed source of 773.6 nm Ti:sapphire laser[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1995, **67**(23): 3396~3398
- 5 Chuangtian Chen, Zuyan Xu, Daoqun Deng *et al.*. The vacuum ultraviolet phase-matching characteristics of nonlinear optical $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ crystal[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **68**(21): 2930~2932
- 6 Chuangtian Chen, Guiling Wang, Xiaoyang Wang *et al.*. Improved Sellmeier equations and phase-matching characteristics in deep-ultraviolet region of $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ crystal[J]. *IEEE J. Quantum Electron.*, 2008, **44**(7): 617~620
- 7 陈创天, 许祖彦, 吕军华 等. 一种非线性光学晶体激光变频耦合器[P]. 中国发明专利, ZL 01115313.X
- 8 C. T. Chen, Z. Y. Xu, J. H. Lü *et al.*. Prism-nonlinear optical crystal coupler for laser frequency conversion[P]. US 6,859,305 B2
- 9 陈创天, 许祖彦, 吕军华 等. 一种非线性光学晶体激光变频耦合器[P]. 日本专利, 4074124
- 10 许祖彦, 吕军华, 王桂玲 等. 非线性光学晶体激光变频光栅耦合器[P]. 中国发明专利, ZL 01123553.5
- 11 G. L. Wang, X. Y. Wang, Y. Zhou *et al.*. 12.95 mW sixth harmonic generation with $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ crystal[J]. *Appl. Phys. B*, 2008, **91**(1): 95~97
- 12 H. B. Zhang, G. L. Wang, L. Guo *et al.*. 175 to 210 nm widely tunable deep-ultraviolet light generation based on KBBF crystal[J]. *Appl. Phys. B*, 2008, **93**(2~3): 323~326
- 13 Xin Zhang, Zhimin Wang, Guiling Wang *et al.*. Widely-tunable and high-average-power fourth harmonic generation of a Ti:sapphire laser with a $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ prism-coupled device[J]. *Opt. Lett.*, 2008, **34**(9): 1342~1344
- 14 Guodong Liu, Guiling Wang, Yong Zhu *et al.*. Development of a vacuum ultraviolet laser-based angle-resolved photoemission system with a superhigh energy resolution better than 1 meV[J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 2008, **79**: 023105
- 15 Wentao Zhang, Guodong Liu, Lin Zhao *et al.*. Identification of a new form of electron coupling in the $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ superconductor by laser-based angle-resolved photoemission spectroscopy[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2008, **100**: 107002
- 16 Haiyun Liu, Guodong Liu, Wentao Zhang *et al.*. Identification of nodal kink in electron-doped $(\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15})\text{CuO}_4$ superconductor from laser-based angle-resolved photoemission spectroscopy[J]. *Cond-mat*, 2008, 0808.0802v
- 17 Wentao Zhang, Guodong Liu, Jianqiao Meng *et al.*. High energy dispersion relations for the high temperature $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ superconductor from laser-based angle-resolved photoemission spectroscopy[J]. *Phys. Rev. Lett.*, 2008, **101**: 017002
- 18 Jianqiao Meng, Wentao Zhang, Guodong Liu *et al.*. Monotonic d-wave superconducting gap in optimally-doped $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1.6}\text{La}_{0.4}\text{CuO}_6$ superconductor by laser-based angle-resolved photoemission spectroscopy[J]. *Phys. Rev. B*, 2009, **79**: 024514