

# 行政院國家科學委員會專題研究計畫成果報告

非線性晶體 BBO及LBO中之紫外和頻

Sum Frequency Generation of UV Light in BBO and LBO Nonlinear Crystals

計畫編號： NSC 87-2112-M-032-011

執行期限： 86年 8月 1日 至 88年 1月 31日

主持人： 唐建堯 執行單位：淡江大學 物理系

一、中文摘要(關鍵詞：非線性光學，  
相位匹配，和頻產生，光參量振盪)

本計畫探討偏硼酸鋇( $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, BBO)及硼酸鋰(LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub>, LBO)非線性光學晶體中，和頻產生高功率、窄頻寬的深紫外光的方法。我們將一光參量振盪器(OPO)系統輸出的兩束光分別與其幫浦(Nd:YAG)雷射的三、四或五倍頻光作和頻。此光參量振盪系統輸出波長之可調範圍在可見光區為440至690 nm 在紅外光區則為730至1830 nm 而我們所關注的和頻波長範圍是從188至230 nm 在BBO中之和頻實驗顯示在206至230 nm的波長範圍內，可獲得70至144 mW的和頻光，其最高轉換效率達23.5%；在195至206 nm之間 可獲得9至20 mW的和頻光，其最高轉換效率達17.5%；然而，在188至192nm之間，我們未觀測到任何和頻光。相較之下，在我們的實驗條件下，LBO中之和頻運作於較小的範圍、且效率較低；然而，在187.7至190.6nm之間，我們獲得30至270 $\mu$ W的和頻光，其最高轉換效率約為1%。經分析比較可發現影響和頻能量轉換效率之主要因素為：非線性光學晶體的有效非線性係數、相位匹配的情況、和輸入光束之品質、強度、及時空重疊性。值得注意的是，當和頻光功率夠高而且非線性晶體的吸收效應顯著時，局部溫度之變化可導致相位匹配角的改變、及和頻光對偏離角度的非對稱分佈。

**Abstract** (Keywords: nonlinear optics, phase matching, sum frequency generation, optical parametric oscillation.)

Generation of high-power narrow-band deep UV light by sum frequency (SFG) in BBO and LBO nonlinear optical (NLO) crystals has been investigated in this project. The two output beams of an optical parametric oscillator (OPO) system were made to sum frequency with the third, fourth, or fifth harmonic of its pump (Nd:YAG) laser, respectively. The visible beam from the OPO system is tunable from 440 to 690 nm, and the infrared beam is tunable from 730 to 1830 nm. The SFG wavelength ( $\lambda_{SFG}$ ) of our concern ranges from 188 to 230 nm. The experiment of SFG in BBO shows that an SFG power of 77 to 144 mW can be obtained for the tuning range 206 -230 nm, with a conversion efficiency up to 23%; and SFG powers of 9 to 20 mW can be obtained for the range 195-206 nm, with a maximum conversion efficiency of 17.5%; however, no SFG signals were observed for the expected region 188-192 nm. In contrast, SFG in LBO was limited to smaller regions and the conversion efficiency is lower than in BBO; however, an SFG power of 30 to 270 $\mu$ W was obtained for  $187.7 \text{ nm} \leq \lambda_{SFG} \leq 190.6 \text{ nm}$ , with a maximum conversion efficiency of about 1%. Our analysis indicates that the SFG

efficiency is mainly dependent on the effective nonlinear coefficient of the SFG crystals, phase matching conditions, and the quality, intensity and spatio-temporal overlap of the input beams. It is noted that when the SFG power is high and its absorption by the NLO crystal is significant, variations of local temperature may give rise to changes of phase matching angles and an asymmetrical distribution of the SFG power versus detuning angle.

## 二、計畫緣由與目的

近年來由於非線性光學晶體材料及雷射技術的突破性進展，產生了具有高功率、高方向性、與窄頻寬等特性的光參量振盪器(OPO)系統；其輸出波長可在寬範圍調變，而可調範圍可遠大於一般染料雷射，或鈦藍寶石雷射；不論在基礎或應用科學，都具有很大的發展空間。目前，以BBO、KTP(KTiOPO<sub>4</sub>)、AgGaS<sub>2</sub>等材料做為參量轉換的OPO系統，依激波(pump)波長之不同，其輸出波長之可調範圍已涵蓋了近紫外、可見光、近紅外、及部分中紅外光區，從連續波到毫微秒、微微秒，以至飛秒級的OPO系統都已成功[1-3]。

雖然，光參量系統輸出的波長範圍很寬，若加以倍頻、或使之與其它頻率之光束混頻(和頻或差頻)[3-11]，則可涵蓋更大的波長範圍，使延伸到深紫外光區。BBO及LBO的性能優越[3]，應用範圍從近紅外到真空紫外光區；雖然它們在可見及紅外光區的非線性係數不算很大，但在深紫外光區的則是。

過去有若干研究利用OPO、染料雷射、Nd:YAG、或鈦藍寶石雷射等(及其諧波)在KDP, KB5, BBO, LBO等晶體中和頻，產生紫外及真空紫外光[3-9]；BBO和頻產生之最短波長為188.9 nm[8]；而LBO和頻產生之最短波長達172.7 nm [9]；然而，在真空紫外光區，其脈衝能量多遠低

於100μJ。因此，我們使用一高性能商品級OPO系統來作進一步探討，比較在BBO及LBO中產生高功率、窄頻寬之深紫外和頻光的可行性及轉換效率；其主要範圍是從188至230 nm。

## 三、研究方法及成果

由過去相關實驗研究所獲得的晶體非線性係數、和(描述主折射率對波長關係的)Sellmeier方程式，並考慮各相位匹配型式，我們計算不同波長在BBO和LBO中和頻所對應的相位匹配角、及有效非線性係數。由此可選擇適合實驗目的之相位匹配型式和晶體切割角，並評估轉換效率。為減少晶體的使用數並獲得適合且較大的波長操作範圍，我們選擇了type-I相位匹配方式來進行和頻實驗，並選用兩顆BBO晶體(高寬長分別為6, 8, 7mm)，其切割角分別為 $\theta=58.5$ 度(BBO-1)及76度(BBO-2)，及(在XY平面相位匹配之)兩顆LBO晶體(高寬長分別為6, 6, 5mm)，其切割角分別為 $\phi=70$ 度(LBO-1)及90度(LBO-2)。

我們的和頻實驗使用Spectra-Physics MOPO-730光參量系統，這是以一Nd:YAG雷射(Spectra-Physics GCR-230)的三倍頻光(波長354.7 nm, 500mJ/pulse, 時寬5.6 ns, 10 Hz)來激發的雙BBO-OPO系統。我們利用此系統原先廢棄的二、三倍頻光，以type-I相位匹配(oo-e)方式來產生四、五倍頻光，並將它們分別與MOPO輸出之可見光(440-690nm)及紅外光(730-1830nm)在BBO及LBO中和頻；其過程如圖一。為使各作用光束在和頻晶體中具有最佳的時間重疊性，我們以optical delay line作適當延遲。

由於本實驗所產生的和頻光(3SFG, 4SFG, 5SFG)是利用Pellin-Broca稜鏡(PBP)分出來，故設計為水平偏振，以減少不必要的反射損失；因此，和頻各輸入光須為垂直偏振。此外因所用之Nd:YAG三倍頻光為垂直偏振，而二倍頻光(532nm, 時

寬約6.4 ns)及MOPO輸出之可見光和紅外光皆為水平偏振，光的偏振需作中間處理：(1)MOPO輸出之可見光(VIS)和紅外光(IR)皆經過double Fresnel rhomb (DFR)而轉變為垂直偏振；(2)因受可用光學元件的限制，在五倍頻光(212.8nm)產生前，我們先將二倍頻光以半波片轉為垂直偏振，令其與IR合併後，再經DFR轉回水平偏振，然後與(經半波片轉為水平偏振的)三倍頻光在BBO晶體中( $\theta=69.5^\circ$ )和頻為五倍頻光最後進行五倍頻光之和頻(產生5SFG)。

我們在和頻時所用的Nd:YAG三倍頻光(直徑約6mm)是激發MOPO後的殘餘光束，其脈衝能量隨波長而變(約在110-180mJ之間)。Nd:YAG二倍頻光經望遠鏡縮小2倍後，通過一BBO晶體產生四倍頻光(直徑約4 mm 時寬約5 ns)；其脈衝能量約為20mJ。Nd:YAG五倍頻光之脈衝能量可達15 mJ，但因避免前述三倍頻光半波片鍍膜之受損，迫而將三倍頻光衰減，使得和頻所用之五倍頻脈衝能量降為5 mJ。這些光束發散角皆低於1mrad。MOPO輸出之可見光的發散角亦小(一般垂直方向低於0.3mrad，水平方向低於1mrad)，其剖面略呈橢圓形(長寬約8mm x 6mm)經2/3倍望遠鏡縮小後，由DFR轉為垂直偏振，再經二色向鏡(脈衝能量在9-32 mJ之間)與各Nd:YAG倍頻光重疊平行而後和頻。MOPO輸出之紅外光束發散角則較大(約為2~3mrad)，其近場剖面形狀不規則略呈三角形，經二色向鏡(脈衝能量在0.7-17 mJ之間)與各Nd:YAG倍頻光重疊平行而後和頻。

Nd:YAG三、四倍頻光與MOPO輸出光之和頻結果如圖二。在和頻光波長為206至230 nm的波長範圍內，我們獲得70至144 mW的和頻光，其最高轉換效率達23.5%。雖然三倍頻和頻之效率在205nm以下迅速下降，我們可以選擇四倍頻和頻。在195至206 nm之間，我們獲得9至20 mW的和頻光，其最高轉換效率達17.5%；然

而在預期的188-192nm區，或許因晶體透明度過低，我們並未觀測到任何和頻光。

Nd:YAG三、四、五倍頻光與MOPO-IR光在LBO中之和頻結果如圖三。相較之下，LBO和頻運作於較小的範圍、且效率較低( $d_{eff}$ 及晶體長度皆較小)；然而，在187.7至190.6nm之間，我們獲得30-270 $\mu$ W的和頻光，其最高轉換效率約為1%。

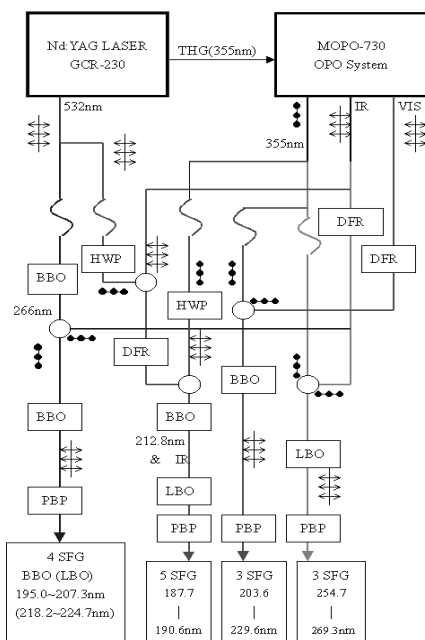
我們亦在相位匹配角附近微調和頻晶體的方向，以測試角度偏差的影響。圖4a所示為500nm光與Nd:YAG三倍頻光在BBO之中所產生之207.6nm和頻光隨晶體角度偏移而顯現的非對稱情形。此異常現象與BBO晶體顯著吸收此和頻光(穿透率約70%)有關。我們發現相位匹配角隨和頻效率增加而增大；在和頻光為144mW時，相位匹配角偏移0.04度。圖4b所示967.7-nm光與Nd:YAG三倍頻光在LBO中產生之259.7nm和頻光隨晶體角度變化所顯現的對稱情況。相比之下，BBO中之和頻對角度偏差或作用光之發散是較敏感的。

#### 四、討論與結論

由於和頻實驗中，二輸入光束之頻寬、時空分佈、及發散程度不同，其運作之分析較倍頻複雜。即使能先令二輸入光束完全重疊平行，一旦光束傾斜入射和頻晶體，折射將使二波長差異懸殊的(折射率不同)光束不再平行，致使實驗者得到「非共線相位匹配」的結果、及相位匹配角的誤差；這是過去許多和頻實驗避而不談的問題。和頻效率除了與晶體有效非線性係數 $d_{eff}$ 、晶體長度、頻帶寬(spectral bandwidth)、角帶寬(angular bandwidth)相關外[3]，還受限於時空重疊因素。然而，在倍頻無法實現或效率不佳時，和頻不失為第二選擇。同時由實驗結果可知：若欲獲得195-225nm之深紫外光，可考慮BBO和頻；而在BBO透明度低或效率差時，則可考慮LBO和頻。

## 五、參考文獻

1. J. Opt. Soc. Am. B, Vol.10, no. 9 and no.10, Sep. and Nov. issues, 1993.
2. W. R. Bosenberg, L. K. Cheng and C. L. Tang, Appl. Phys. Lett. **54**, 13 (1989).
3. *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*, by V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan and D. N. Nikogosyan (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1991).
4. B. Wu, F. Xie and C. Chen; D. Deng and Z. Xu, Opt. Commun. **88**, 451 (1992).
5. S.P. Lu, Y.Q. Yuan, L.S. Yang, and C.K. Wu, Chinese Physics **10**, 872 (1990).
6. W. Kranntzky, K. Ding, A. Seilmeier and W. Kaiser, Opt. Commun. **34**, 483 (1980).
7. Y. Tanaka, H. Kuroda and S. Shionoya, Opt. Commun. **41**, 434 (1982).
8. W. Muckenheim, P. Lokai, B. Burghardt, and D. Basting, Appl. Phys. B **45**, 259 (1989).
9. F. Seifert, J. Ringling, F. Noack, O. Kittelmann, and V. Petrov, Proc. SPIE., vol. 2380, 73 (1995).
10. M. Nisoli, S. de Silvestri, G. Valiulis, and A. Varanavicius, Appl. Phys. Lett. **68**, 3540 (1996).
11. R. Danielius et al., Appl. Optics **35**, 5336 (1996).

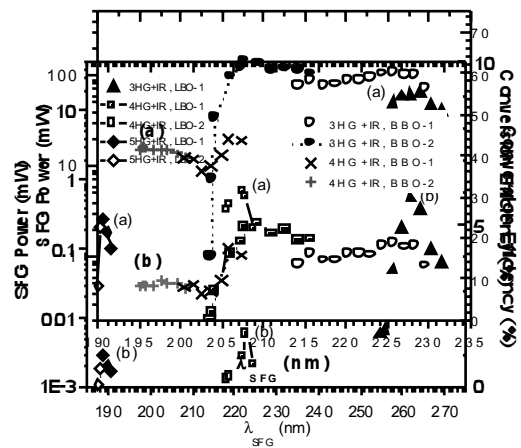


○ : optical delay line ; DFR: double Fresnel rhomb ;  
 ◇ : dichroic mirror; HWP: half-wave plate ; PBP: Pellin-Broca prism.

## 六、附圖

圖一、實驗裝置示意圖。

圖二. Nd:YAG三,四倍頻光與MOPO輸出光之和頻。(a)和頻光之功率,(b)轉換效率。



圖三. Nd:YAG三、四、五倍頻光與IR之LBO和頻。(a)和頻光之功率,(b)轉換效率。

圖四. 偏離相位匹配角及和頻光之被吸收對和頻產生的影響。

