

Bericht zum Vorhaben

**„Entwicklung von Kurzpuls-Ultravioletten-Lasern mit
CLBO Konversion (KUUL)“**

neo**LASE**

im Rahmen des Eurostars Projekts

**Ein europäischer Cäsium-Lithium-Borat-Kristall
(CLBO-Kristall) für die nächste Generation von Ultravioletten-Lasern**

**E! 113401 Akronym
„ECnex“**

Dr. Maik Frede
neoLASE GmbH
Hollerithallee 17
D-30419 Hannover

Das diesem Bericht zugrunde liegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Bildung und Forschung gefördert. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei der Autorin / beim Autor.

Förderkennzeichen: 01QE1940D
Projektlaufzeit: 01. 11. 2020 – 31.10.2023

1. Kurzdarstellung

1.1 Aufgabenstellung

Optisch nichtlineare Kristalle sind die Schlüsselkomponente für viele im ultravioletten (UV) Spektralbereich emittierende Festkörperlaser. Es war das Ziel des Projektes, eine neue Familie von nichtlinearen Kristallen für die Frequenzkonversion von Laserstrahlung in den ultravioletten Spektralbereich industriell nutzbar zu machen. Mit Hilfe eines neuen Verfahrens zur hermetischen Abdichtung von hygroskopischen nichtlinearen Kristallen sollten sowohl die Haltbarkeit der Kristalle erhöht als auch die Herstellungskosten von Lasersystemen im UV-Spektralbereich verringert werden. Laserhersteller sollten Systeme mit höherer Ausgangsleistung und reduzierten Kosten entwickeln können.

Im vorliegenden Projekt sollen hierfür Arbeiten mit CLBO durchgeführt und neuartige Deep-UV-C-Laser auf Basis dieses Kristalls entwickelt werden. Dieser neuartige Kristall hat verglichen mit LBO und BBO eine höhere Strahlungshärte und somit das Potential höhere Lebensdauern und höhere Leistungsdichten zu ermöglichen. Die besondere Herausforderung bei CLBO besteht darin, Kristalle mit extrem guter optischer Qualität zu züchten, um die Streuung der UV-C-Wellenlänge zu verringern. Bisher haben nach unserem Kenntnisstand nur zwei Unternehmen eine ausreichende Qualität realisiert (Coherent / USA und Oxide / Japan). Eine überlegene Lebensdauer wird erreicht, indem die optimalen Kristallwachstumsbedingungen und Umgebungsbedingungen von CLBO identifiziert werden. Für die Produktion von Lasersystemen im UV-Spektralbereich sind hohe Anforderungen zu erfüllen, insbesondere für stark hygroskopische Kristalle wie Barium Borate (BBO). In Fällen, in denen eine trockene Umgebung nicht ausreicht, werden spezielle motorisierte Shifter eingesetzt, um mehrere Spots im selben Kristall verwenden zu können. Durch die im Projekt durchgeführte Beschichtung wird der CLBO unabhängig von den Umgebungseinflüssen und somit industriell nutzbar.

1.2 Planung und Ablauf des Vorhabens

Das Hauptziel des Teilprojekts ist eine neuartige UV Laserquelle auf CLBO-Basis mit einer Pulsdauer unterhalb von 10 ps bei einer Wellenlänge von 266 nm. Mit diesem System soll eine mittlere Leistung von 1,5 W und mehr als 10 μ J Pulsenergie erreicht werden. Ein stabiles, industrielles Lasersystem in diesen Parametern und einer langen Lebensdauer ist bisher einzigartig und stellt ein Alleinstellungsmerkmal für neoLASE dar.

Ziel 1: Realisierung eines Hochleistungs-Pikosekunden-Laserdemonstrators bei 266 nm (AP7)

Im Arbeitspaket 7 wurde ein Laserdemonstrator mit Frequenz-Konversion bei 266 nm aufgebaut, der zunächst einen kommerziell verfügbaren BBO Kristall einsetzt. In einem ersten Schritt wurde eine Kammer zur Frequenz-Konversion entworfen, die den Anforderungen der UV-Erzeugung genügt und für den industriellen Einsatz geeignet wäre. Zur Erreichung der Laserparameter wurde ein Demonstrator-Laser aufgebaut, der eine Leistung >25 W im Infraroten Spektralbereich ermöglicht, mit einer Pulsdauer von 10 ps und einer Pulsenergie > 180 μ J. Die beiden Projektteile werden dann zur UV-Erzeugung genutzt, wobei zunächst Tests

bei 355 nm durchgeführt werden, um Messaufbau und Stabilität zu testen. Danach wird lediglich die Kristallkonfiguration geändert, um die Zielwellenlänge von 266 nm zu erreichen

Ziel 2: Leistungsskalierung des Laserdemonstrators mit verbessertem nichtlinearen Kristalltyp (AP 8)

Die Erkenntnisse aus AP7 werden in diesem Projektteil dazu genutzt, direkt vergleichbare Ergebnisse mit CLBO zu erhalten. Da dieser kommerziell nur unbeschichtet zu vertretbaren Kosten erhältlich ist und unter Labor-Bedingungen sehr rasch im Minuten-Bereich degradiert, werden nur die im Projekt passivierten und ALD-beschichteten Kristalle der Projektpartner eingesetzt.

1.3 Wesentliche Ergebnisse und Zusammenarbeit

Das Verbundprojekt basierte auf einem Konsortium mit den Projektpartner LZH und Cristal Laser. Da es im Projektverlauf leider noch nicht möglich war, Kristalle von Cristal Laser in ausreichender Qualität und richtigem Schnitt zu erhalten, wurde ein unbeschichteter Kristall von Casix genutzt, der durch das LZH mit einer Beschichtung passiviert wurde. Dieser Kristall wurde abschließend von neoLASE über 2 Monate im Labor genutzt und zeigte nach dieser Zeit keinerlei Degradation.

Die im Projekt entworfene Frequenz-Konversionsbox funktioniert wie geplant, um zwei Konversionskristalle unabhängig zu temperieren, ohne eine Kontamination des Kammer-Innenraums zu verursachen. Mit Hilfe dieser Kammer wurden sowohl die 3. Harmonische als auch die 4. Harmonische bei 266 nm des Demonstrator-Lasers erzeugt.

Da der CLBO-Kristall erst ganz am Ende des Projektes zur Verfügung stand, wurden die meisten Messungen mit BBO durchgeführt.

Bei einer Leistung von 0.5 W und 5 MHz konnte der CLBO-Kristall über mehr als 100 h auf demselben Spot betrieben werden, ohne dabei Anzeichen einer Degradation zu zeigen.

II Ausführliche Darstellung

1. Erzielte Ergebnisse

Schema:

Während der Projektlaufzeit wurde ein Kurzpuls-Ultraviolett-Laser bei 266 nm aufgebaut, der auf einem im Projekt für die Nutzung im industriellen Produktionsumfeld passiviert wurde. Die Abbildung 1 zeigt einen Überblick über die Systemkomponenten, auf die im weiteren Verlauf im Einzelnen eingegangen wird.

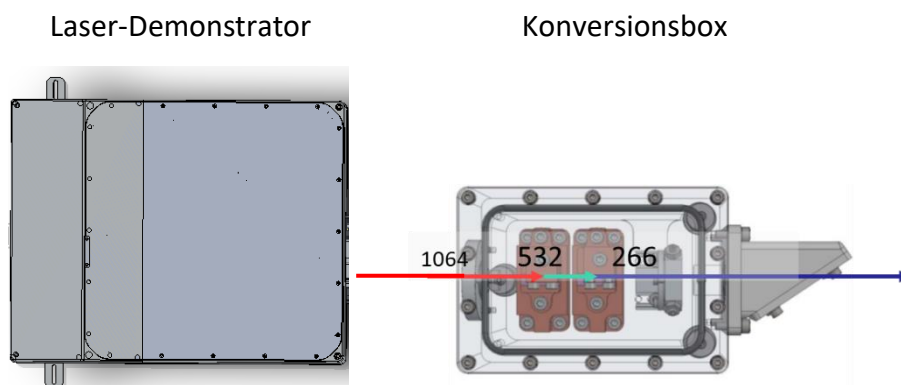


Abbildung 1: Übersicht des UV Lasersystems

Bei neoLASE stehen für den Test und die Optimierung des MOPA Systems grundsätzlich zwei Technologien mit Wellenlängen von 1030 nm oder 1064 nm zur Verfügung. Für beide Wellenlängen wurde jeweils ein Demonstrator aufgebaut und Vortests zur Frequenz-Konversion durchgeführt. Grundsätzlich soll der in Abbildung 2 dargestellte Aufbau zur Untersuchung der Frequenzkonversion realisiert werden. Die finalen Messungen an CLBO erfolgten dann mit dem 1064 nm Demonstrator.



Abbildung 2: Übersicht über das Konversions-Schema

Laser-Demonstrator und Vorexperimente:

Für die opto-mechanische Entwicklung wurde zunächst ein Laboraufbau zur Untersuchung der Strahlparameter realisiert. Auf dessen Grundlage wird das mechanische Design der Konversionseinheit basieren. Diese Einheit soll sowohl für 1030 nm und sub-ps als auch für 1064 nm Pulse mit einer Pulsdauer > 10 ps nutzbar sein. Für ein passendes Design müssen daher zunächst geeignete Konversionsparameter wie z.B. Kristalllängen und Strahlgrößen für die jeweiligen Lasersysteme identifiziert werden. Dazu wurden zunächst zwei Lasersysteme verwendet, die aus bestehenden Komponenten aufgebaut wurden.

Aufgrund der unterschiedlichen Pulsdauern für die Lasersysteme bei 1030 nm und 1064 nm wurde zunächst eine Parameterstudie für die SHG für das jeweilige System durchgeführt. Hierzu wurden für das 1030 nm System drei verschiedene Kristall-Längen von 3.7 mm, 5 mm und 7 mm mit jeweils drei unterschiedlichen Strahlgrößen mit einem $1/e^2$ Radius von 370 μm (Fokus 1), 600 μm (Fokus 2) und 800 μm (Fokus 3) untersucht. Es zeigt sich, dass durch die kurze Pulsdauer und hohe Intensität bereits kleine Pulsenergien mit mehr als 60% Effizienz konvertiert werden können. Für eine gute Langzeitstabilität und zerstörungsfreien Betrieb ist es erstrebenswert, möglichst große Strahldurchmesser und längere Kristalle zu wählen. So kann eine Konversion über 60 % z.B. für 50 μJ Pulse bei einem Strahlradius von 370 μm mit einem 5 mm Kristall erfolgen oder mit einem 7 mm Kristall bei 600 μm . Im ersten Fall beträgt die Spitzenintensität 13 GW/cm² während sie im zweiten Fall bei nur 4.9 GW/cm² liegt.

Für deutlich längere Pulsdauern ist bei ähnlicher Geometrie eine sehr viel geringere Konversion zu erwarten. Für nicht-kritisch phasenangepasste Konversion begrenzt der Walk-off allerdings die Kristall-Länge, da dieser ein elliptisches Strahlprofil der zweiten Harmonischen verursacht. Für den 1064 nm Laser wurde daher ein 10 mm Kristall gewählt und die Konversion bei 200 μm Radius und 550 μm Radius untersucht und hohe Effizienzen $> 60\%$ bei geringer Pulsenergie von 40 μJ erreicht.

Zum Test der Kristallanordnung und erste Stabilitätsuntersuchungen wurde zunächst die dritte Harmonische (THG) bei 355 nm bzw 343 nm erzeugt. Dieser Zwischenschritt war für neoLASE sehr hilfreich, um die Kopplung der beiden Kristalle und das Kammerdesign vorab zu testen, ohne direkt auf die Probleme bei der Handhabbarkeit und Haltbarkeit der sehr teuren CLBO-Kristalle zu stoßen. Aus diesem Grund wurden auch erste Langzeit-Tests für die fertige Konversionskammer zuerst für die THG durchgeführt.

Die UV-Kammer soll die effiziente Erzeugung der 4. Harmonischen (FHG) bei höchstmöglicher Stabilität erlauben. Dies beinhaltet sowohl die mechanische Stabilität, Minimierung von Umwelteinflüssen wie Temperatur und Feuchtigkeit sowie eine Maximierung der Lebensdauer der Kristalle und sonstigen optischen Komponenten. Wesentliche Punkte für das finale Kammerdesign wie notwendige Freiheitsgrade und Temperierung können unter deutlich einfacheren Bedingungen bereits für die THG getestet werden. Für die UV-Erzeugung wird zunächst ein 10 mm LBO-Kristall für die SHG und ein 10 mm LBO-Kristall für die THG in einem Abstand von wenigen cm hintereinander positioniert, wobei eine geringe Drehung der Kristalle lediglich – wie in der späteren Kammer - in der Horizontalen erfolgen kann. In dieser Anordnung konnte mit einem Strahlradius von 550 μm mit zwei 10 mm Kristallen bei einer Pulsenergie von 40 μJ eine UV Konversion über 25% erreicht werden

UV-Kammer-Design

Basierend auf den obigen Voruntersuchungen wurde eine UV-Kammer entworfen, die in einer möglichst kompakten Bauform eine effiziente und Langzeit-stabile UV-Erzeugung ermöglicht. Die verwendete Kristall-Anordnung kann sowohl für die THG-Erzeugung mit LBO (SHG 1064/1030 + SFG 1030/515 bzw. SFG 1064 /532) verwendet werden, als auch für die FHG mit CLBO (SHG 1064/1030 + SHG 532/515). Bereits für die 3. Harmonische müssen hohe Anforderungen an die verwendeten Materialien, Sauberkeit und Versiegelung gestellt werden, die sich bei der Verwendung von CLBO nochmal weiter steigern. Das Kammer-Design ist daher darauf ausgelegt, dass sich sämtliche Kabel nur außerhalb der mit Viton-Dichtungen hermetisch versiegelten Kammer befinden.

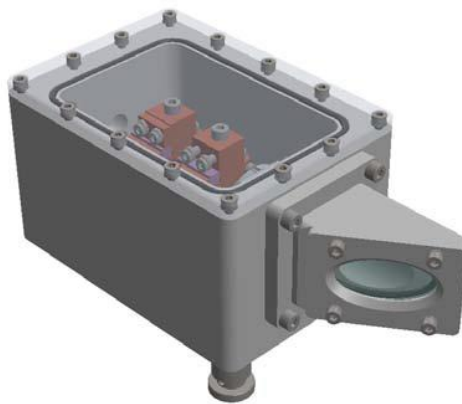


Abbildung 3: Kammer-Design im CAD

UV-Konversion zu 266 nm mit BBO

Da ein passivierter CLBO-Kristall erst am Ende des Projektes zur Verfügung stand, wurden die ersten Tests und Messungen bei der Zielwellenlänge 266 nm zunächst mit BBO als nicht-linearem Medium durchgeführt. Diese Messungen dienen als Vergleichsgrundlage für die Konversion mit CLBO und es kann dabei bereits der Aufbau der Kammer sowie die Anforderungen an die Reinheit der Kammer getestet werden. Für die Untersuchung der Lebensdauer des CLBO und der möglichen Degradation, war zudem der Aufbau einer Charakterisierung bei 266 nm notwendig. Es wurde durch die Verwendung eines Linsen-Teleskops ein einstellbarer Fokus für die SHG/FHG realisiert und durch eine Anordnung von dichroitischen Spiegeln und Quarzglas-Keilen die Fundamentalen und 2. Harmonische Strahlungen abgetrennt (siehe Abbildung 4). Dadurch war es möglich, ein Strahlprofil bei 266 nm gleichzeitig zur Leistung mit aufzunehmen.

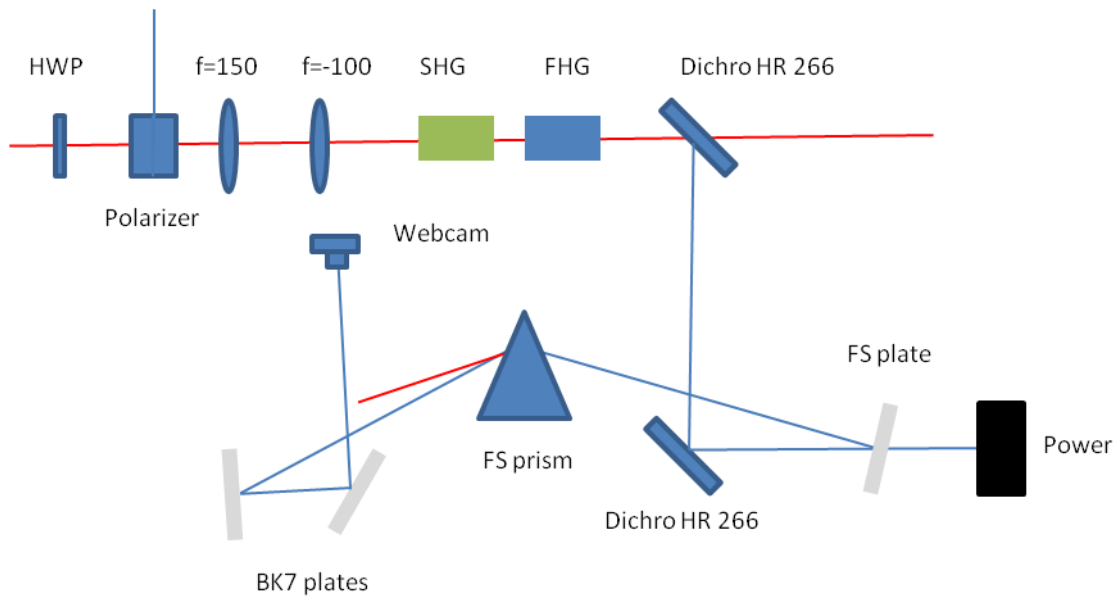
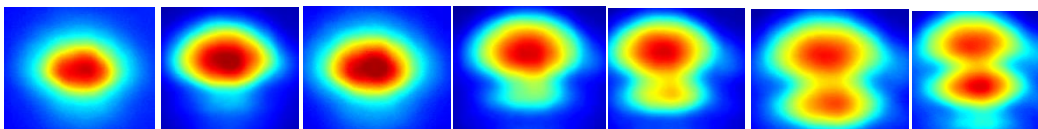


Abbildung 4: Aufbau zur Charakterisierung der 4. Harmonischen bei 266 nm

Bereits in den ersten Versuchen zeigte sich, dass bei höheren Leistungen bzw. Pulsenergien Instabilitäten auftreten, die eine Limitierung der Konversion darstellen und die Stabilität der erzeugten Laserleistung beeinträchtigen.

Ein Beispiel für die beobachteten Effekte ist in Abbildung 5 für eine Leistungskennlinie bei 1 MHz zu sehen:

120 mW 480 mW 660 mW 840 mW 950 mW 1020 mW 1100mW



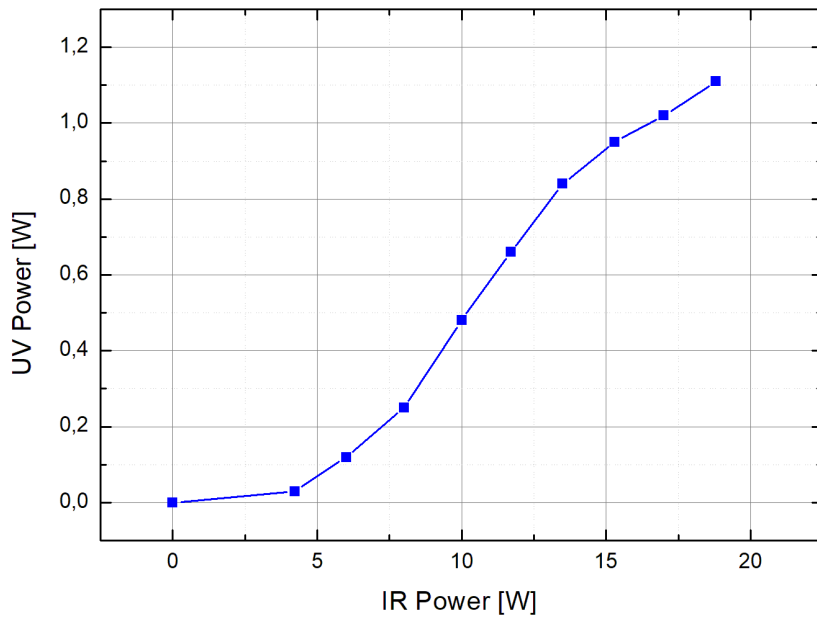


Abbildung 5: Kennlinie für die Erzeugung der 4. Harmonischen bei 1 MHz

Das Strahlprofil verändert sich zunehmend mit höherer Leistung und spaltet sich schließlich auf zu mehreren Teilstrahlen. Dieser Effekt verschlimmert sich bei niedrigen Repetitionsraten bzw. höherer Pulsenergie. Auch in einem Energiebereich, der zunächst noch ein stabiles Gaußprofil unterstützt, degradiert nach einigen Stunden das Strahlprofil und die Leistung fällt stark ab.

Durch Literatur-Recherche wurde eine auftretende Zwei-Photonen-Absorption (TPA) als mögliche Ursache identifiziert, die durch nichtlineare Anregung von Elektronen im BBO eine Absorption von 266 nm sowie nachfolgend der erzeugenden 532 nm / 1064 nm Strahlung verursacht. Dies führt zu einer starken lokalen Aufheizung des Kristalls und des Verlusts der Phasenanpassung, sowie bei höherer Intensität, zur Zerstörung des Materials. Zum genaueren Verständnis der TPA wurden die erzeugte 266 nm Pulse fokussiert und ein zweiter BBO durch den Fokus bewegt. Aus diesen Messungen (siehe Abbildung 6) konnte eindeutig nachgewiesen werden, dass die beobachteten Effekte durch eine mit steigender Peak-Intensität auftretenden Absorption hervorgerufen werden.

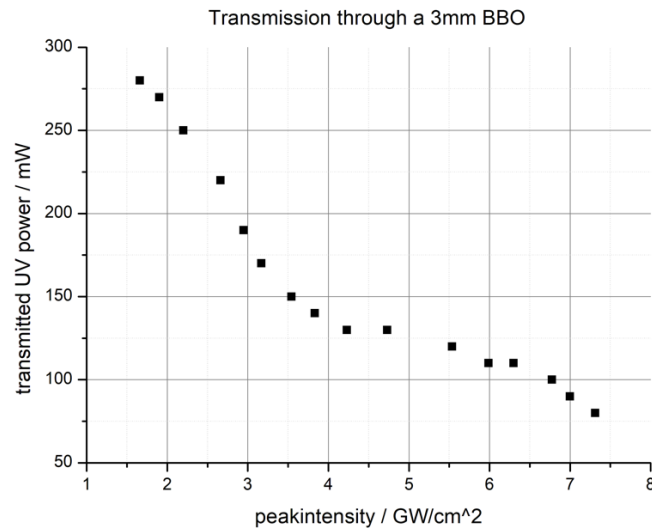


Abbildung 6: Absorption von UV Licht in BBO in Abhängigkeit der Intensität

Zusätzlich zur Absorption wurde auch das Strahlprofil im Fokus und ca. 8 mm hinter dem Fokus vermessen und nachgewiesen, dass neben den beobachteten Limitationen der Leistung und Pulsenergie auch die Verformung des Strahlprofils durch die TPA erklärt werden kann.

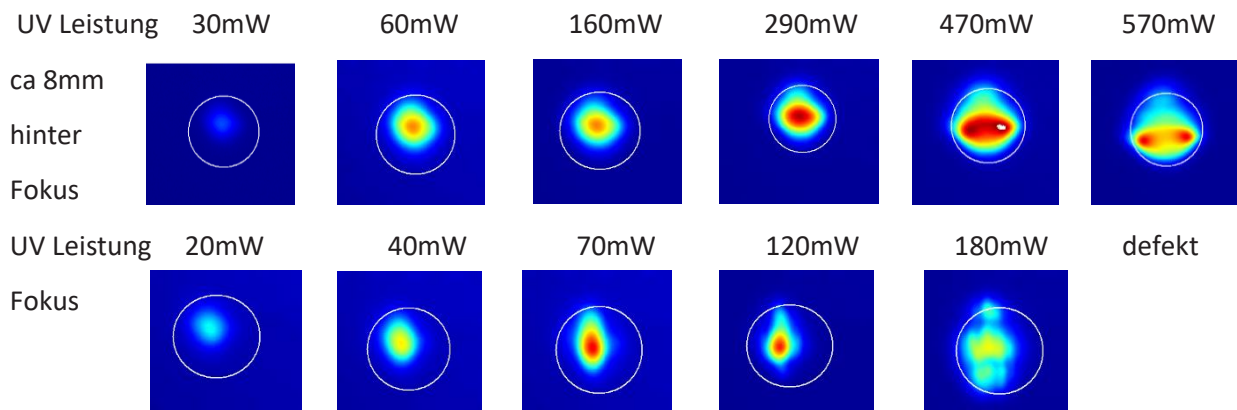


Abbildung 7: Absorption von UV Licht in BBO in Abhängigkeit der Intensität

Die nichtlineare Absorption beeinträchtigt auch die Lebensdauer des verwendeten BBO, die ja für die Verwendung von CLBO im Mittelpunkt des Projektziels stand. Daher wurde der Aufbau dazu benutzt, zahlreiche Langzeitmessungen an verschiedenen Fokuspositionen durchzuführen, um auf diese Weise einen Zusammenhang zwischen Lebensdauer und Peak-Intensität für das verwendete Lasersystem mit 10 ps Pulsdauer und hoher Repetitionsrate zu erhalten. Das Ergebnis ist in **Abbildung 8** **Abbildung 7** zu sehen:

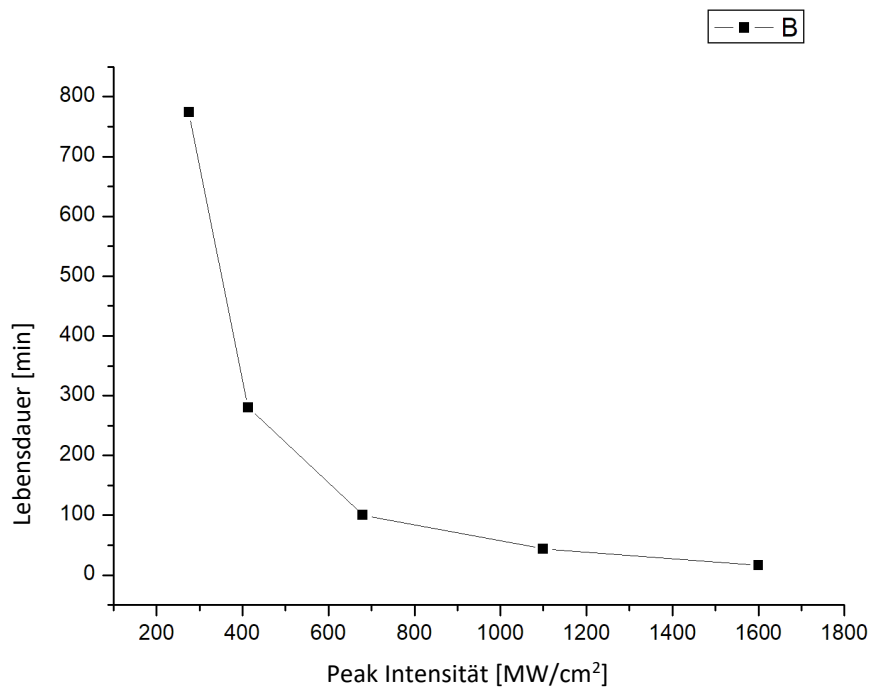


Abbildung 8: Lebensdauer eines Spots für die UV Erzeugung bei BBO

Abschließend lässt sich aus diesen Untersuchungen zusammenfassen, dass die UV Erzeugung bei 266 nm in BBO bei möglichst niedrigen Spitzenintensitäten erfolgen sollte, um eine möglichst lange Lebensdauer zu erreichen. Die TPA wird in dieser Form bei CLBO nicht erwartet, aber in der Literatur wurden ähnliche Effekte beschrieben, die durch Freisetzung von Elektronen ins Leitungsband eine de-fokussierende Wirkung der freien Ladungsträger auftreten kann, die dann das Strahlprofil und die Konversionseffizienz zerstört. Eine Reduzierung der Intensität unter 100 MW/cm² war im vorliegenden Aufbau jedoch nicht möglich, da die Konversion von 1064 nm zu 532 nm ebenfalls mit der gleichen Fokusgröße wie die anschließende Verdopplung zu 266 nm erfolgt. Dadurch wird die Effizienz der SHG-Erzeugung so weit reduziert, dass man nur noch eine Leistung unter 100 mW bei 266 nm erhält und eine Konversion von wenigen Prozent.

Folglich wurde der Aufbau des Demonstrators und der Kammer dahingehend abgeändert, dass die SHG bereits außerhalb der UV-Kammer erzeugt wird und beide Foki somit entkoppelt, werden können. So ist es prinzipiell möglich, die UV-Konversion zu variieren, ohne dabei die eingestrahlte SHG-Leistung zu verändern. Durch diese Entkopplung gelang eine Skalierung der erzielten Leistung in BBO auf > 4 W bei eingestrahlten 12.5 W SHG Leistung, was einer Konversion von ca. 30% von 532 nm zu 266 nm entspricht (siehe Abbildung 9).

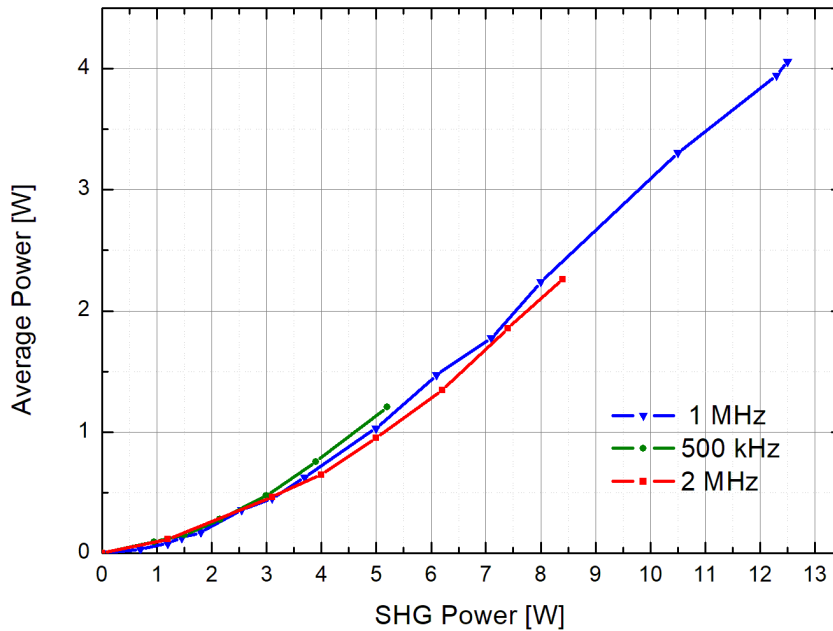


Abbildung 9: Konversion in BBO mit entkoppelter Fokussierung

UV-Konversion zu 266 nm mit CLBO

Der vom LZH beschichtete CLBO stand im Projekt leider erst ganz am Ende zur Verfügung. Die Dimensionen des Kristalls wurden nach Absprache mit dem LZH auf $(3 \times 3 \times 10)$ mm³ festgelegt, zu einem Zeitpunkt, der vor den oben aufgeführten Erkenntnissen lag. Die Apertur des CLBO ist daher etwas begrenzt und als Strahlgröße der SHG wurde ein Durchmesser von ca. 600 µm gewählt, damit wenigstens drei mögliche Spots im Fall eines Defektes möglich wären. Ähnlich wie im Fall von BBO wurden zunächst Kennlinien bei verschiedenen Wiederholraten gemessen und dabei jeweils das Strahlprofil mit untersucht (siehe Abbildung 10).

Da die Untersuchungen an BBO gezeigt hatten, dass eine zu hohe Pulsintensität wesentlichen Einfluss auf die Konversion und die Qualität des Strahlprofils haben kann, wurden die Messungen für CLBO zunächst bei einer hohen Repetitionsrate von 2 MHz ausgeführt. Es wurde dabei bei sehr gutem Strahlprofil eine Leistung von 3.2 W bei 266 nm erzielt, was einer Konversion von mehr als 30% von 532 nm zu 266 nm entspricht.

Ähnliche Kennlinien wurden auch für geringere Wiederholraten vermessen und es zeigt sich, dass die Konversionseffizienz mit steigender Pulsenergie tendenziell geringer wird. Dies widerspricht der generellen Erwartung, dass der nichtlineare Prozess mit höherer Spitzenintensität effizienter abläuft. Dies ist bereits ein erster Hinweis, dass auch in CLBO Limitationen bei höheren Pulsenergien bzw. Spitzenintensitäten auftreten.

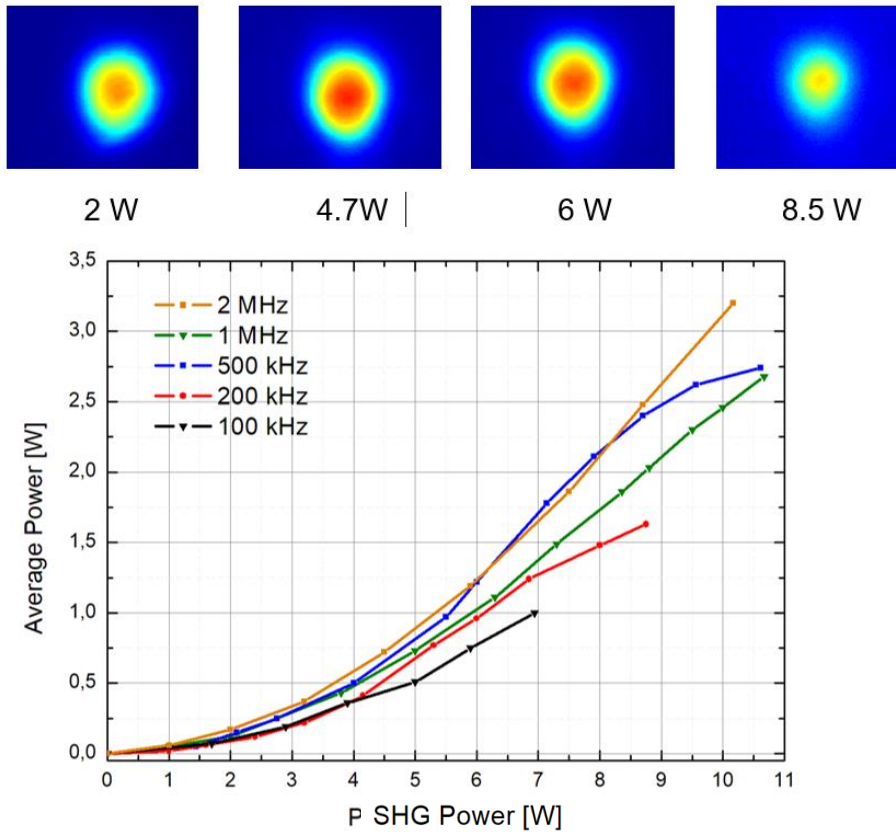


Abbildung 10: Oben: Strahlprofile der erzeugten UV-Strahlung bei 2 MHz. Unten: Kennlinie der Konversion in CLBO bei verschiedenen Repetitionsraten

Betrachtet man das Strahlprofil bei 100 kHz genauer, erkennt man, dass sich unterhalb des eigentlichen Strahlzentrums ein ringförmiger Untergrund ausgebildet hat.

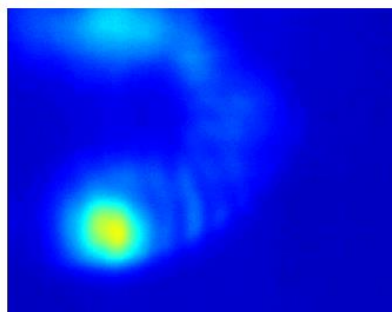


Abbildung 11: De-fokussierung bei höherer Intensität

Diese Beobachtungen stimmen gut mit Erkenntnissen aus der Literatur zusammen. So wurde in der Veröffentlichung „Ultraviolet laser-induced degradation of CLBO und BBO“ Y. Mori, Opt Mat. Expr. 559, 2014 ein ähnliches Verhalten für Nanosekunden-Pulse beobachtet und durch eine UV-induzierte Veränderung des Brechungsindex erklärt, das reversibel ist und den Kristall

nicht zerstört. Dieser Effekt trat für die dort verwendeten Pulsparameter bei einer Spitzenintensität ab ca. 50 - 100 MW/cm² auf. In den vorliegenden Messungen erreicht man diesen Intensitätsbereich bei ~ 2.5 - 5 W bei einer Wiederholrate von 2 MHz.

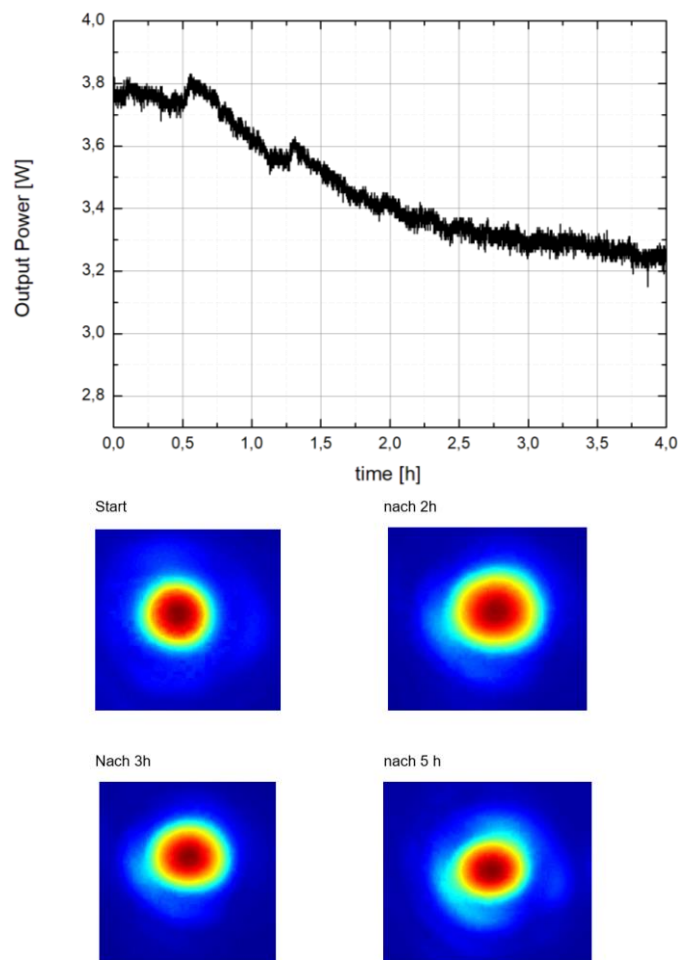


Abbildung 12: Strahl-Degradation in der Langzeitmessung

Ein wesentlicher Punkt und Meilenstein des Projektes war die stabile UV-Erzeugung über 100 h am selben Kristallspot, d.h. ohne Verschieben des FHG-Kristalls. Dieses Ziel wurde erreicht, wie in Abbildung 13: Langzeit-Messung CLBO über 100 h gezeigt. Allerdings wurden dazu nur 500 mW bei 266 nm konvertiert bei einer Wiederholrate von 2 MHz und somit lediglich 250 nJ an Pulsenergie erzeugt. Bei höheren Energien zeigten sich nichtlineare Effekte, die zu einer Degradation des Strahlprofils ohne Zerstörung des Kristalls führten.

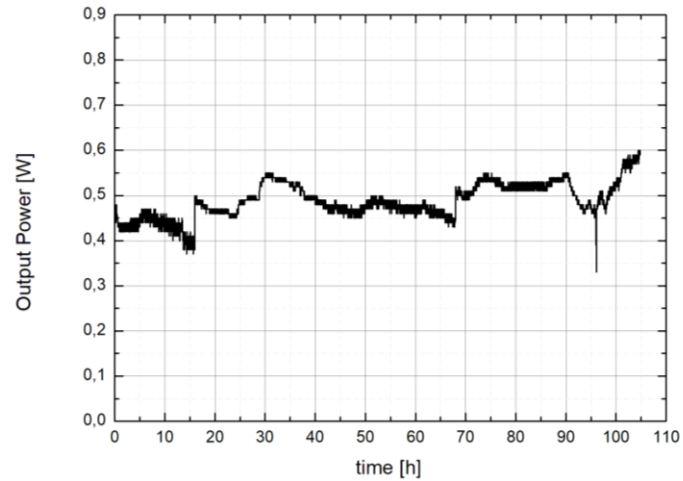


Abbildung 13: Langzeit-Messung CLBO über 100 h

Dieser Wert sollte durch Herabsetzen der Spitzenintensität mit größeren Strahlrädern und größeren Kristall-Aperturen weiter skalierbar sein.

Der vom LZH beschichtete CLBO zeigte sich robust gegenüber den Laborbedingungen und war auch nach mehreren Wochen Betrieb in der UV-Kammer noch ohne Anzeichen von Degradation (siehe Abbildung 14: Kristall-Facette des CLBO nach 2 Monaten im Labor).



Abbildung 14: Kristall-Facette des CLBO nach 2 Monaten im Labor

