

荧光显微镜中蓝光激光器基频腔面膜的研制

付秀华 吴冠岐* 刘冬梅 李松岩 张 静 董 力

长春理工大学光学工程学院, 吉林 长春 130022

摘要 蓝光激光器在生物工程、激光显示屏、激光医疗以及侦查通讯等众多领域都有着重要应用,而谐振腔作为激光器的重要组成部分,如何合理有效地激发出蓝光更是研究的重点。针对蓝光激光器的使用要求,以Nd:YAG作为基底, Ta₂O₅和SiO₂分别作为高低折射率材料,利用电子束真空镀膜设备,双离子源辅助沉积的方法进行谐振腔面膜的制备。借助膜系设计软件对实验进行模拟分析,优化改善电场分布,减小激光对薄膜的损伤,详细地叙述了极值法累积误差产生的原因,以及镀膜材料的色散引起的短波区和长波区的监控差异,通过分析折射率所引起的光学厚度变化,调整修正因子,最终制备出了光谱性能好,吸收小,化学性能稳定的滤光膜,满足蓝光激光器的使用要求。

关键词 薄膜;膜系设计;Nd:YAG;蓝光激光器;离子源辅助沉积

中图分类号 O484.4

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201542.0207001

Study and Fabrication of Blue Laser Fundamental Cavity Film in Fluorescence Microscope

Fu Xiuhua Wu Guanqi Liu Dongmei Li Songyan Zhang Jing Dong Li

*School of Optoelectronic Engineering, Changchun University of Science and Technology,
Changchun, Jilin 130022, China*

Abstract The blue laser has significant meaning in the application fields of biological engineering, laser screen, laser medical technology, investigation, communication and many fields of science. The resonant cavity is an important component of laser, how to make it work effectively turns to be a major subject. Aimed at the operating requirements of blue laser cavity surface film, based on Nd:YVO₄, Ta₂O₅, SiO₂ are chosen as coating materials. The films are prepared by vacuum coating equipment and double ion beam assist deposition. Through technics feedback analysis to the test result by several simulation experiments, the electric field distribution is optimized, which can decrease the damage of thin-film from laser. The reason of extremum method cumulative error is described, as well as reasons of control differences of short wavelength range and long wavelength range. By analysing optical thickness caused by refractive index, adjust the tool factor. The filter coating with well-optical performance, low-absorb, and steady-chemical properties is prepared, which satisfy the operating requirements of blue laser.

Key words thin films; film system design; Nd:YAG; blue laser; ion beam assisted deposition

OCIS codes 310.6860; 310.6845; 140.3580

1 引 言

荧光显微镜主要是由配备透射光及表面荧光装置的Hg灯光源、激光二极管(LD)抽运激光器、电荷耦合元件(CCD)以及一些电子控制部分来组成^[1]。将蓝色荧光蛋白作为活细胞内蛋白质的标记分子,经激光器倍频出的蓝光作为激发源来激发活细胞,利用荧光共振的方法^[2-3],就可以清楚地研究活细胞内蛋白质的相互作用了^[4]。

收稿日期: 2014-07-29; 收到修改稿日期: 2014-09-12

基金项目: 国家自然科学基金(60977052)、省部产学研结合项目(2010A090200006)

作者简介: 付秀华(1963—),女,博士,教授,主要从事光学薄膜技术和光学制造技术等方面的研究。E-mail: goptics@126.com

* 通信联系人。E-mail: wu_guanqi@126.com

在生物医学研究中,紫外光的激发光能量较大,会对被标记的生物分子产生损伤,当用紫外光照射时,细胞组织会吸收背景光并产生自身荧光,同时会对脱氧核糖核酸(DNA)产生破坏,但是蓝光不仅能够为细胞组织提供背景色,而且较容易的能从其他波长发射的荧光标记蛋白中分辨出来^[5-6],因此蓝光激光器在生物医学领域有着广泛的应用前景。

本文以 Ta₂O₅和 SiO₂作为高低折射率材料,Nd:YAG作为基底,针对 1319 nm 激光经过先倍频后合频的方式获得了高功率 440 nm 蓝光激光的输出,最大输出功率可达到 7.5 W 的特殊要求,并进行了五波段腔面反射膜的研制。

2 膜系设计

根据蓝光激光器的发光原理,对腔面膜提出了更高的要求,如表 1 所示,对于谐振腔而言,两端面要分别镀制增透膜和反射膜,由于增透膜较简单,因此本文重点研究反射膜。

表 1 蓝光激光器腔面膜参数要求

Table 1 Blue laser cavity face film parameters required

Wavelength/nm	Reflectivity /%
440	≥96
660	≥95
946	≤8
1064	≤3
1319	≥96

2.1 镀膜材料的选择

针对上述参数要求,在基底为掺钕钇铝石榴石晶体(Nd:YAG)的谐振腔端面设计多波段反射膜,Nd:YAG 化学性能较为稳定,热物理性能较好,具有优越的光谱性能,是常被用于固体激光领域的激光材料^[7]。在常温条件下,激光能级主要跃迁出 1064、1319、946 nm 的激光波长。1319 nm 的激光经三硼酸锂(LBO)倍频后产生 660 nm 红光,然后基频光和倍频光同时进入三倍频 LBO 晶体进行合频产生 440 nm 蓝光。由于 1064 nm 和 1319 nm 激光有共同的能级,1064 nm 阈值较低,先起振,因此在膜系设计时应尽可能地增加其透射率,抑制 1064 nm 的起振^[8],才能更好地得到 1319 nm 的倍频及三倍频的输出^[9-10]。

激光能量高,单色性好,对薄膜的质量要求很多,通常激光对薄膜的破坏概括来说主要是激光作用在薄膜上,薄膜吸收激光能量引起的热效应的破坏,以及高强度的激光在介质内部形成高频场强的破坏。在 400~1400 nm 范围内透明的高折射率材料主要有 TiO₂和 Ta₂O₅,考虑到薄膜要求中既有反射波段又有透射波段的要求,选择损伤阈值较高的 Ta₂O₅作为高折射率材料,低折射率材料选择与 Ta₂O₅匹配较好的 SiO₂^[11]。不同条件下 Ta₂O₅和 SiO₂的折射率如表 2 所示^[12]。

表 2 不同条件下 Ta₂O₅和 SiO₂的折射率

Table 2 Refractive indexes of Ta₂O₅ and SiO₂ under different conditions

Vacuum / (10 ⁻³ Pa)	Temperature / °C	Refractive index (Ta ₂ O ₅)	Refractive index (SiO ₂)
3.0	200	2.072(0.55 μm)	1.454(0.55 μm)
2.2	200	2.078(0.55 μm)	1.455(0.55 μm)
3.0	290	2.081(0.55 μm)	1.460(0.55 μm)
2.2	290	2.104(0.55 μm)	1.464(0.55 μm)

2.2 膜系设计

谐振腔反射膜所涉及的波段涵盖了可见和近红外波段,因此膜系结构设为 Subl(HL)⁹2.2(HL)¹³lAir,其中 Sub 代表 Nd:YAG 晶体基底,Air 为空气,H 和 L 分别代表 Ta₂O₅和 SiO₂的 λ/4 光学厚度。

根据法布里-珀罗滤光片原理,使用反射率急速变化的反射膜系,只要使选定间隔层的两边反射率相等,并满足 $\left| \frac{1}{2}(\varphi_1 + \varphi_2 - 2\sigma) \right| = m\pi$ 的相位条件,那么在任一波长都能得到高透射率,透射率的计算可描述为

$$T = \frac{T_1 T_2}{(1 - \sqrt{R_1 R_2})^2} \frac{1}{1 + \frac{4\sqrt{R_1 R_2}}{(1 - \sqrt{R_1 R_2})^2} \sin^2 \frac{1}{2}(\varphi_1 + \varphi_2 - 2\delta)} \quad (1)$$

出现反射带的条件是 $\sum n_i d_i = q \frac{\lambda}{2}$ ，基于以上两个理论，经过优化计算后的膜系结构为 Subl 0.4H1.1L0.5H0.7L1.1H1.6L0.7H0.8L1.7H1.1L (HL)⁴ 2.2(HL)⁹ 2.5H2.2L2.8H0.8L2.9H1.7L3.2H|Air。反射率曲线为图1,电场强度分布图为图2。

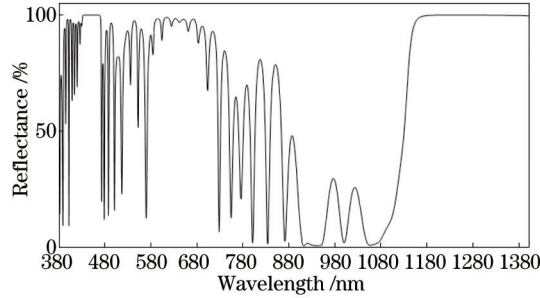


图1 理论设计反射率光谱曲线

Fig.1 Reflectivity curve of theoretical design spectrum

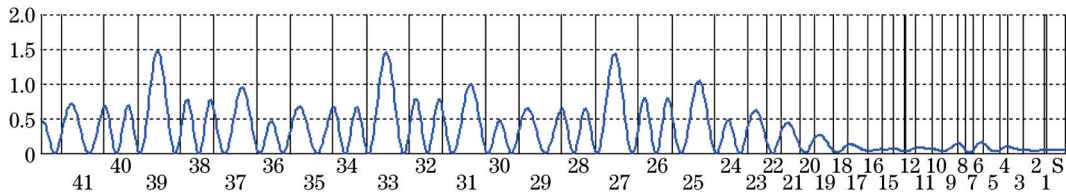


图2 膜层电场强度分布图

Fig.2 Electric field intensity distribution layer

从透射率与反射率来看,已经满足使用要求。但考虑薄膜实际用于激光器,必须提高抗损伤阈值才能保证薄膜的实用性,从图中可看出25、27、33和39层为电场峰值过高处。SiO₂膜是无定形压应力结构,吸收小,不易损伤。经过实验验证,除了基板的光洁度可以提高阈值外,激光最大吸收发生在空气侧第一膜层和极大电场强度的界面上,吸收的能量与场强和膜层的吸收系数成正比,SiO₂膜的吸收系数通常比Ta₂O₅膜的吸收小1~2个数量级,因此在基板与膜层之间加镀 λ/2 厚的 SiO₂,对 1064 nm 的激光平均阈值可提高 30%,同样,由于高反(HR)膜在空气侧易损伤,在空气侧加一层半波长整数倍厚度的 SiO₂保护膜可显著改善抗损伤能力^[13]。考虑到以上因素,重新优化后的膜系结构为 Subl2L0.5H1.2L0.5H0.6L1.1H1.4L0.7H0.9L1.7H (HL)⁴ 2.2 (HL)⁹ 2.5H3L3.5H2.1L2.7H1L|Air,反射率图像如图3所示,电场强度分布图如图4所示,从图中可以看出电场强度分布有了明显改善。由于晶体控制没有误差补偿,无法实时反映膜层的光学特性,对于较厚的膜层尤其是红外膜会有2%的监控误差,因此,膜系内的周期性膜系采用光学监控法,1到10层、37到42层采用晶体控制法。

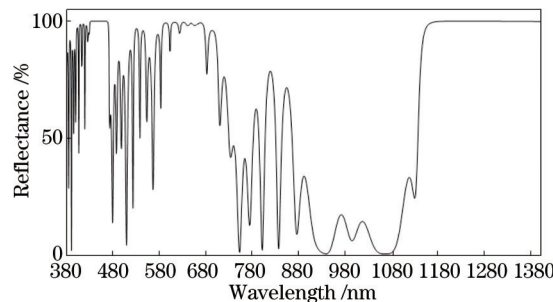


图3 理论设计光谱反射率曲线

Fig.3 Reflectivity curve of theoretical design spectrum

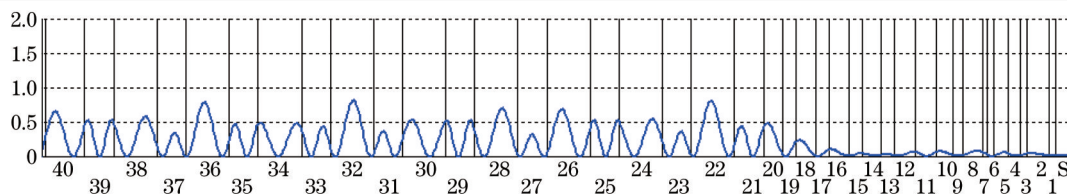


图4 膜层电场强度分布图

Fig.4 Electric field intensity distribution layer

3 薄膜制备

薄膜制备是在国产 1250 型真空镀膜机上完成的。设备配有双探头 IC/5 石英晶体膜厚控制仪和 OMS 光控装置,以及双离子源,分别是考夫曼离子源和霍尔源。考虑到基底的表面粗糙度会对激光的损伤阈值造成影响,镀膜前应先对基底表面进行抛光,抛光后的基片首先用丙酮清洗,然后用体积比为 1:1 的乙醇溶液和乙醚溶液擦拭基底。擦拭后将工件放入真空室,当真空度达到 9.0×10^{-2} Pa 时对工件进行烘烤,温度达到 290 °C 后保持恒温,真空度为 3.0×10^{-3} Pa 时制备薄膜。

4 测试结果与分析

4.1 膜层性能测试

Nd:YAG 晶体的尺寸为 $\Phi 7$ mm \times 185 mm,薄膜的机械牢固性和均匀性,都会影响激光器中一系列晶体在激光振荡时的发散角、走离角、互相长度作用以及倍频处的最佳相位匹配角^[14],需对膜层进行质量测试。

1) 高低温实验:滤光片经过 300 °C 阶梯型高温退火后,观察到膜层表面无褶皱现象,膜层应力匹配合适。

2) 拉力测试:用粘性强度大于 3 N/cm²,宽 2 cm 的胶带平整无气泡且紧贴膜层表面重复粘贴垂直迅速拉伸表面薄膜,发现有部分薄膜脱落。通过调整工艺,将烘烤温度升为 350 °C 再次实验,发现仍有脱膜现象。

对于考夫曼离子源来说离子能量高、束流可精准控制,但是作用角度小,有一定的局限性,而霍尔源离子束发散有较大均匀区域,但其能量较低。基于 Nd:YAG 晶体的端面尺寸很小,膜层的总厚度又较厚,决定采用考夫曼离子源与霍尔源同时轰击的方法进行实验。实验后进行拉力测试重复几十次,无脱膜现象。

4.2 光谱分析

采用日本岛津分光光度计 UV-3150 进行测试,测试曲线如图 5 所示。

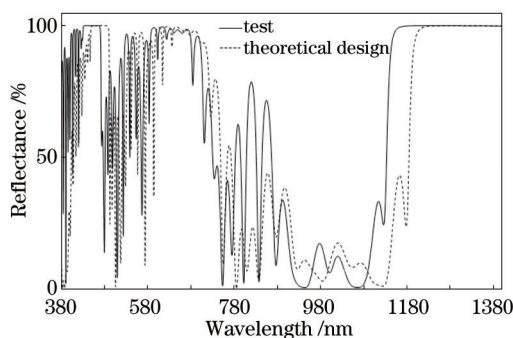


图5 测试曲线与理论设计曲线比较

Fig.5 Test curve compared with the theoretical design curves

设计曲线与实际镀制曲线差异较大,不仅中心波长的位置向长波方向移动了近 100 nm,而且 946 nm 与 1064 nm 处的反射曲线也与设计曲线不同。利用制备薄膜时的实时监控数据,以及膜系设计软件 TFCalc 进行分析模拟发现,对于膜系中采用极值法监控的周期膜系部分,如果各层膜停止蒸镀时其反射率或透射率应正好处于极值处,但实际蒸镀时由于判断误差,各层膜不可能严格终止在极值点上,而每一层的控制误差又会引起后继膜层的补偿,因此,除第一层外的其他各层,都会有上一层的误差延续以及当前层的控制误差而导致的位相厚度误差。对于膜层较多厚度较厚的膜系,蒸镀时所产生的累积误差是不容忽视的,合理分光控片将有效地改善累积误差的影响。

通过多次模拟实验发现,除了控制产生的累积误差之外,在极值监控膜层厚度的时候,Ta₂O₅与SiO₂并不是按照 1:1 的光学厚度进行沉积的,除了直接沉积在光控片上的 Ta₂O₅以外,其余膜厚实际比例为 1:1.14,在双倍极值法控制的部分体现尤为严重。

将新得到的厚度比例,带入原有膜系重新优化后,并调整波长来补偿监控误差所产生的厚度误差,测试结果如图 6 所示。

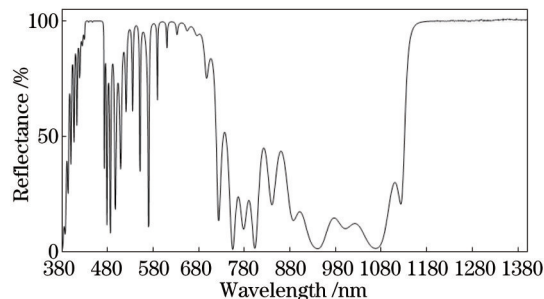


图 6 改进工艺后测试曲线

Fig.6 Test curve after improved technology

由图 6 可以看出, 660 nm 处还不满足要求。通过查阅资料发现,一般薄膜材料的折射率均有一些色散。如果入射介质折射率为 1,基板折射率为 n_s ,薄膜折射率为 n_f ,则膜层透射率为 $T = \frac{4}{F(n_s) + G(n_f, n_s) \left[1 - \cos\left(\frac{4\pi n_f d}{\lambda}\right) \right]}$,将 $4/T$ 对 d/λ 求偏微分,当 $n_f d = m\lambda/4$ (m 为奇数)时,偏微分值不为 0;当 $n_f d = m\lambda/2$ (m 为奇数)时,偏微分值为 0,说明在有色散存在的情况下,光学厚度为 $\lambda/4$ 的奇数倍处不再是极值,而光学厚度在 $\lambda/4$ 偶数倍时仍是极值^[13]。因此,在此膜系中,双倍极值控制法所监控的部分误差较小,而短波长单倍极值控制法所监控的部分,由于光学常数的改变仍然有较大厚度误差产生。实验测得 Ta₂O₅与 SiO₂的色散图分别如图 7,图 8 所示。

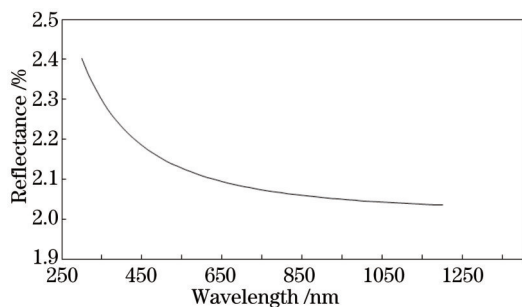


图 7 Ta₂O₅的色散曲线

Fig.7 Dispersion curve of Ta₂O₅

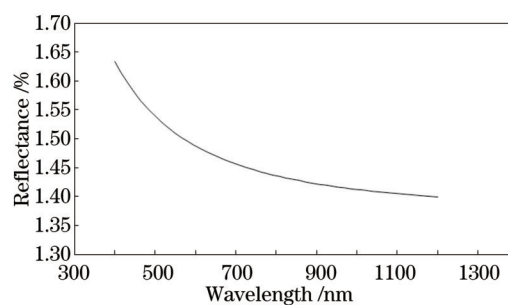


图 8 SiO₂的色散曲线

Fig.8 Dispersion curve of SiO₂

通过分析折射率所引起的光学厚度变化,调整晶控与光控部分的修正因子, $T_{\text{tooling}} = D_{\text{actual}}/D_{\text{display}} \times 100\%$,再次进行实验的测试曲线为图 9。

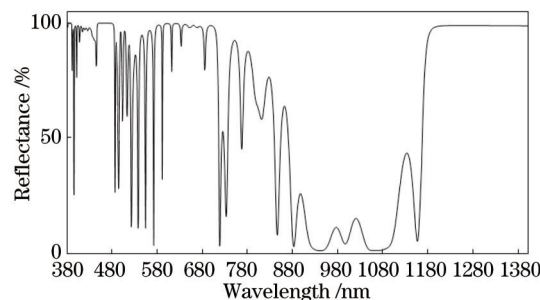


图 9 最终测试反射率光谱曲线

Fig.9 Final test reflectance spectrum

从图9可以看出440 nm处的反射率为98.5%,660 nm处的反射率为97%,946 nm处的反射率为2.7%,1064 nm处的反射率2.2%,1319 nm处的反射率为99.1%,各点透射率与反射率均在要求范围内,满足使用要求。

5 结 论

通过选择Ta₂O₅和SiO₂的高低折射率材料的匹配,采用电子束真空镀膜的方式以及离子源辅助沉积系统,从提高抗损伤阈值的角度对原有膜系进行分析改进,在制备过程中通过修改修正系数,着重调整单倍极值控制时所产生的监控误差,最终研制出了在Nd:YAG基底上的多波段反射膜,并采用双离子源同时轰击的方式,有效地改善了基底端面小、膜层厚所导致的脱膜现象。虽然制备出的薄膜符合要求,但仍然需要通过改进制备工艺提高激光薄膜的抗激光损伤阈值以及膜层的机械牢固度等问题,这也是今后激光反射膜的研究趋势。

参 考 文 献

- 1 Yin Yanxia, Xiang Benqiong, Tong Li. The application of studying fluorescence spectroscopy on protein[J]. Experimental Technology and Management, 2010, 27(2): 36-40.
尹燕霞, 向本琼, 佟 丽. 荧光光谱法在蛋白质研究中的应用[J]. 实验技术与管理, 2010, 27(2): 36-40.
- 2 Pan Zutong, Guan Hongliang, Yuan Huaping, *et al.*. Application of fluorescence spectrum in pharmaceutical analysis[J]. Journal of Jishou University (Natural Science Edition), 2005, 26(3): 27-34.
潘祖亭, 关洪亮, 原华平, 等. 荧光光谱法在药物分析中的应用[J]. 吉首大学学报(自然科学版), 2005, 26(3): 27-34.
- 3 G H Jiang, Q Wei. Function and structure of N-termianl and G-termianl domains of calcineurin B subunit[J]. Biol Chem, 2003, 384(9): 1299-303.
- 4 Zhang Zhiyi, Zhou Tao, Gong Weili, *et al.*. Progress of application and study of FRET technology in life science[J]. Journal of Chinese Electron Microscopy Society, 2007, 26(6): 620-624.
张志毅, 周 涛, 巩伟丽, 等. 荧光共振能量转移技术在生命科学中的应用及研究进展[J]. 电子显微学报, 2007, 26(6): 620-624.
- 5 Xie Guang, Liu Xinyun, Zheng Yun, *et al.*. Spectroscopy study on the interaction between theophylline and pepsin[J]. Nat Prod Res Dev, 2006, 18: 558-561.
谢 光, 刘芯韵, 郑 芸, 等. 茶碱与胃蛋白酶相互作用的光谱性质研究[J]. 天然产物研究与开发, 2006, 18: 558-561.
- 6 E S Souza, I Y Hirata, L Juliano, *et al.*. End-to-end distance distribution in bradykinin observed by Forster resonance energy transfer[J]. Biochim Biophys Acta, 2000, 1474(2): 251-261.
- 7 Tian Hongbin, Wang Li. Analysis of output characteristics of Nd:YVO₄ and Nd:YAG all-solid-state laser[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2005, 43(3): 15-18.
田宏宾, 王 丽. Nd:YVO₄和Nd:YAG全固态激光器输出特性的比较分析[J]. 激光与光电子学进展, 2005, 42(3): 15-18.
- 8 Li Jun, Ding Yizhong, Yao Jianquan, *et al.*. Study on all-solid-state CW 1319 nm Nd:YAG laser[J]. Laser Journal, 2004, 25(1): 1-3.
李 君, 丁意仲, 姚建铨, 等. LD抽运高功率连续1319 nm Nd:YAG激光器的研究[J]. 激光杂志, 2004, 25(1): 1-3.
- 9 Z P Sun, R N Li, Y Bi, *et al.*. Generation of 4.3-W coherent blue light by frequency-tripling of a side-pumped Nd:YAG laser in LBO crystals[J]. Opt Express, 2004, 12(26): 6428-6433.
- 10 H B Peng, W Hou, Y H Chen, *et al.*. Generation of 7.6-W blue light laser by frequency-tripling of a Nd:YAG laser in LBO crystals[J]. Opt Express, 2006, 14(14): 6543-6549.
- 11 Fu Xiuhua, Han Fang, Zhang Jing, *et al.*. Study and fabrication of four wavelengths cavity surface film based on Nd:YVO₄ crystal[J]. Acta Photonica Sinica, 2014, 43(5): 0531001.
付秀华, 韩 放, 张 静, 等. 基于Nd:YVO₄晶体四波段腔面膜的研制[J]. 光子学报, 2014, 43(5): 0531001.
- 12 Fu Xiuhua, Huang Jinlong, Mo Zhaoyan, *et al.*. Design and fabrication of 589 nm laser optical path integration system filter film[J]. Chinese J Lasers, 2013, 40(3): 0307001.
付秀华, 黄龙龙, 莫朝燕, 等. 589 nm激光器光路整合系统滤光膜的研制[J]. 中国激光, 2013, 40(3): 0307001.
- 13 Tang Jinfa, Gu Peifu, Liu Xu, *et al.*. Modern Optical Thin Film Technology[M]. Hangzhou: Zhejiang University Press, 2006. 338-344.
唐晋发, 顾培夫, 刘 旭, 等. 现代光学薄膜技术[M]. 杭州: 浙江大学出版社, 2006. 338-344.
- 14 Zhang An. Research on the KTP Crystal Applied in THG of Nd:YAG 1319 nm Laser[D]. Tianjin: Tianjin University, 2010.
张 安. KTP晶体应用于Nd:YAG1319 nm激光三倍频的研究[D]. 天津: 天津大学, 2010.

栏目编辑: 张浩佳