

基于腔内倍频的 457 nm 激光器高反射腔镜的研制

刘冬梅**, 李五一*, 付秀华, 张静, 张功

长春理工大学光电工程学院, 吉林 长春 130022

摘要 基于倍频反射膜的设计理论, 结合膜系设计软件实现了多波段激光腔面高反射膜的设计。在制备过程中, 基于最小二乘法原理建立了残余蒸镀量与膜层厚度之间的关系式, 解决了膜厚控制误差累积导致薄膜光谱性能变差的问题。制备的薄膜在 457 nm 和 914 nm 波长处的反射率分别为 99.9% 和 99.6%, 在 808, 1064, 1342 nm 波长处的透射率分别为 97.2%、96.8% 和 93.1%, 满足 457 nm 激光器的使用要求。

关键词 薄膜; 腔面高反射膜; 倍频反射; 膜厚控制; 最小二乘法

中图分类号 O484

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201845.1103001

Fabrication of High-Reflective Cavity Mirrors for 457 nm Laser Based on Intracavity Frequency Doubling

Liu Dongmei**, Li Wuyi*, Fu Xiuhua, Zhang Jing, Zhang Gong

School of Electro-Optical Engineering, Changchun University of Science and Technology,
Changchun, Jilin 130022, China

Abstract Based on the design theory of frequency doubling reflective films, the design of multi-band high-reflective films on laser cavity surface is realized with the film design software. In the fabrication process, the deterioration problem of the thin film spectral performance caused by the accumulation of the film thickness control error is solved based on the relationship between the residual evaporation amount and the film thickness established by the least square method. The reflectivity of the fabricated thin films at 457 nm and 914 nm is 99.9% and 99.6%, and the transmissivity at 808 nm, 1064 nm and 1342 nm is 97.2%, 96.8% and 93.1%, respectively, which satisfies the requirements of the 457 nm laser.

Key words thin films; high-reflective film on cavity surface; frequency doubling reflection; film-thickness control; least square method

OCIS codes 310.6805; 310.3840; 310.1860; 310.6188

1 引 言

457 nm 蓝光激光具有波长短、光子能量大等优点, 在密度光学存储、激光显示、水下通讯和生物医学等领域有着广泛的应用^[1]。目前, 获得 457 nm 蓝光激光的最高效快捷的方法是将 808 nm 激光进行耦合聚焦之后抽运 Nd:YVO₄ 晶体, 将激光介质中 Nd³⁺ 离子⁴F_{3/2} → ⁴F_{9/2} 准三能级跃迁产生的 914 nm 激光经过非线性晶体进行腔内倍频来实现^[2-3]。在室温条件下, 激光能级主要跃迁出 914,

1064, 1342 nm 的激光波长, 其中 1064 nm 波段发射谱线最强, 1342 nm 波段发射谱线次之, 而 914 nm 波段发射谱线最弱。因此, 激光器谐振腔内不仅要保证对 914 nm 基频光和 457 nm 蓝光的高反射, 还要控制 1064 nm 和 1342 nm 的透射, 充分抑制这两个波段的振荡, 从而实现最佳倍频输出。

在设计激光器谐振腔时, 通常在激光器聚光元件与激光晶体之间放置腔镜。尹浩等^[4]提出在 Nd:YVO₄ 晶体前端面镀制 914 nm 和 457 nm 高反射膜作为腔镜, 使谐振腔的结构更加紧凑。然而, 在

收稿日期: 2018-05-28; 修回日期: 2018-06-25; 录用日期: 2018-07-17

基金项目: 国家重点研发计划 (2018YFB1107500)、吉林省科技发展计划项目 (20150204047GX)、吉林省重大科技攻关专项 (20140203002GX)

* E-mail: lwy_optics@126.com; ** E-mail: sjx8811@sohu.com

激光器聚光元件上镀制腔面高反射膜作为腔镜的研究鲜有报道。本文通过对镀膜材料进行分析,设计优化膜系,优化工艺参数,在 457 nm 激光器聚光元件上研制腔面高反射膜,使其具有对抽运光聚焦和激光腔面高反的双重功能,从而达到缩小激光器体积的目的。

2 膜系设计

根据 457 nm 激光器的发光原理,该激光腔面高反射膜的具体参数见表 1。

表 1 激光腔面高反射膜具体参数

Table 1 Specifications of high-reflective film on laser cavity surface

Wavelength /nm	Reflectivity /%
457	≥99
808	≤4
914	≥99
1064	≤4
1342	≤8

2.1 镀膜材料的选择

400~1400 nm 波段常用的高折射率材料有 TiO₂、Ta₂O₅、HfO₂ 和 H₄。TiO₂ 在加热蒸发过程中会因分解而失氧,形成亚氧化钛薄膜^[5],从而增加膜层吸收,严重影响镀膜膜的稳定性。电子束加热蒸发条件下 HfO₂ 的折射率低于 H₄ 和 Ta₂O₅,其中 H₄ 是在 TiO₂ 和 La₂O₃ 化学合成过程中产生的,其主要成分是 LaTiO₃,H₄ 的光学性能和蒸镀速率稳定,易控制且吸收率小,具有较高的激光损伤阈值^[6-7],因此选择 H₄ 作为高折射率材料。与 H₄ 匹配较好的低折射率材料有 MgF₂ 和 SiO₂。由于 MgF₂ 具有很高的张应力,当膜层厚度过大时,应力累积会导致膜层破裂,因此选择 SiO₂ 作为低折射率材料。

2.2 膜系设计

该薄膜要同时满足多个波长的高透射和高反射,由于 914 nm 基频光、808 nm 抽运光和 1064 nm 强发射谱线的波长相差较小,因此在设计过程中要将其进行有效分离。考虑到制备过程中的膜厚控制误差,故既要保证 808 nm 和 1064 nm 透射区有足够的宽度,又不能影响 914 nm 波段处的反射率。

采用常规的两个高反射膜堆叠加的膜系进行设计^[8],由高反射膜的设计理论可知,高反射带的宽度只与两种材料的折射率之比有关^[9],计算公式为

$$\Delta g = \frac{2}{\pi} \arcsin \left(\frac{n_H - n_L}{n_H + n_L} \right), \quad (1)$$

式中 n_H 和 n_L 分别为 H₄ 和 SiO₂ 的折射率, Δg 为相对波数。设计过程中主要有两个难点:1)两个高反膜堆叠加会增加膜层厚度,使膜层的吸收增大,很难达到高透射;2)该膜系在中心波长处的反射带覆盖了 808 nm 和 1064 nm 两个波长,利用 TFCalc 膜系设计软件优化时难度太大。基于以上问题,考虑到 457 nm 蓝光激光是由 914 nm 基频光经过腔内倍频实现的,根据倍频反射膜的设计理论,当周期性膜系基本周期中各膜层厚度之和是基频波长的 1/2 时,通过改变高低折射率材料的相对厚度比,可得到倍频反射,还可以缩小反射带带宽。以 Sub|(1.5H 0.5L)¹⁴|Air 为基础膜系,出现反射带的条件是

$$\sum n_i d_i = q \frac{\lambda}{2}, \quad (2)$$

式中 $n_i d_i$ 为膜系基本周期中第 i 层膜的光学厚度, q 为正整数, λ 为出现反射带的中心波长。该膜系出现反射带的中心波长满足的条件是

$$\lambda_0 / \lambda = q, q = 1, 2, 3, \dots, \quad (3)$$

式中 λ_0 为参考波长。

当 q 为 4 的倍数时,每层膜都是虚设层,故除去这些波长就能确定实际反射带的中心波长,用相对波数 $g = \lambda_0 / \lambda$ 来表示,则在 $g = 1, 2, 3, 5, 6, 7, \dots$ 波数的位置上出现反射带,因此当基频波长为 914 nm 时,457 nm 波长处也位于反射带中。在高反射带的两侧,反射率会陡然变小^[10],透射率峰值的位置为

$$\frac{\phi_1 + \phi_2 - 2\delta}{2} = m\pi, m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots, \quad (4)$$

式中 ϕ_1 和 ϕ_2 为反射相位, δ 是间隔层的相位厚度。经软件优化后的膜系为 Sub|1.0H 0.8L 0.4H 0.6L 0.5H 0.4L 1.0H 0.6L (1.5H 0.5L)⁸ 1.2H 0.7L 0.3H 0.4L 1.2H 0.2L 0.9H|Air,总厚度为 3.3 μm,光谱反射率曲线如图 1 所示。

为了提高抽运光和强发射谱线的透射率,在基片后表面镀制 808,1064,1342 nm 的增透膜,经软件优化后的膜系为 Sub|0.8H 0.3L 1.9H 1.7L|Air,光谱透射率曲线见图 2。

3 薄膜制备

在惠州奥普康公司生产的 900 型真空镀膜机上完成薄膜制备,采用电子束蒸发的方法沉积 H₄ 和 SiO₂,采用德国 INFICON 公司生产的 SQC-310 型晶控仪监控薄膜的厚度和沉积速率,采用考夫曼离子源进行辅助沉积。当真空度达到 9.0×10^{-2} Pa 时

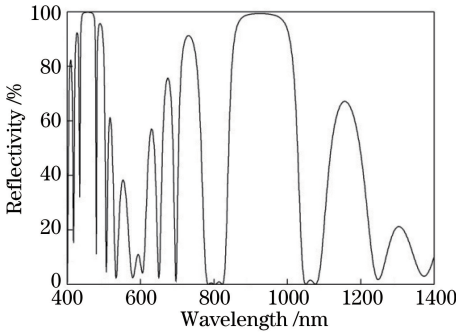


图 1 理论设计光谱反射率曲线

Fig. 1 Reflectivity curve from theoretically designed spectrum

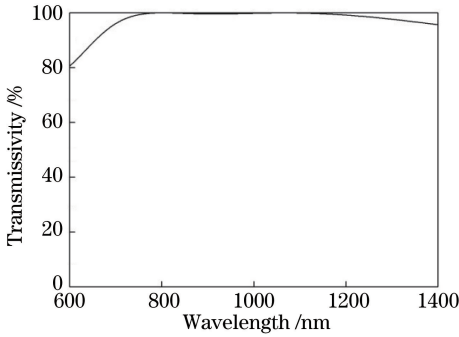


图 2 后表面设计光谱透射率曲线

Fig. 2 Transmissivity curve from back surface designed spectrum

进行烘烤加热,温度设定为 290 °C。当真空度达到 3.0×10^{-3} Pa 时,打开离子源轰击基片 10 min 后开始蒸镀,蒸镀工艺参数见表 2。

表 2 H_4 、 SiO_2 蒸镀工艺参数

Table 2 Evaporation process parameters of H_4 and SiO_2

Substrate	Degree of	Evaporation	Flow rate
Material	temperature /	vacuum /	of O_2 /
	°C	Pa	($mL \cdot min^{-1}$)
H_4	290	1.0×10^{-2}	0.3
SiO_2	290	1.0×10^{-2}	0.7

4 测试结果与分析

4.1 光谱性能测试

薄膜镀制完成后,采用日本岛津公司生产的 UV-3150 型分光光度计进行测试,前表面光谱测试曲线如图 3 所示。可以看出,808 nm、1064 nm 两个波长处的反射率测试值比理论设计值大,而且曲线整体向长波方向漂移了 20 nm。利用 TFCalc 膜系设计软件对测试光谱曲线进行模拟分析,由于制备过程中存在膜厚控制误差,实际镀制的薄膜整体厚度偏大,导致光谱曲线发生变化。当每层 H_4 或

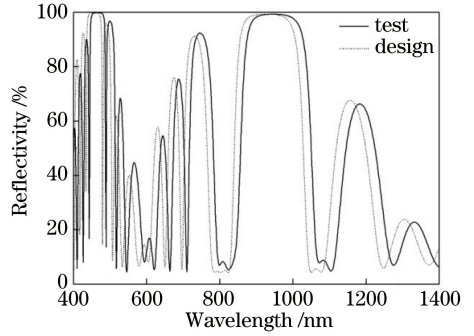


图 3 反射率理论设计曲线与测试曲线对比

Fig. 3 Comparison between theoretically designed curve and test one of reflectivity

SiO_2 蒸镀结束时挡板会自动关闭,但残留在真空室中的膜料粒子还会继续到达基板,使监控到的膜层厚度产生误差。

在制备过程中,先对晶控系统显示的膜系的每层残余蒸镀量进行记录,再对测试光谱曲线进行逆向反演验证,重复多次实验后从中选取 4 次残余蒸镀量进行对比,计算每层残余蒸镀量的平均值,结果如图 4 所示,可以看出,残余蒸镀量的大小与材料、层数有关。对于同种材料,其残余蒸镀量随层数的增加而增大。这里采用石英晶体对膜厚进行监控,通过监控石英晶体振动频率的变化量来控制膜层厚度^[11],其工作原理为

$$\Delta f = -\frac{\rho_M}{\rho_Q} \cdot \frac{f^2}{N} \Delta d_M, \quad (5)$$

式中 ρ_M 为膜层密度, ρ_Q 为石英密度, f 为石英晶体的基频, N 为石英晶体的频率常数。在材料给定的情况下, $\left(\frac{\rho_M}{\rho_Q}\right) \left(\frac{f^2}{N}\right)$ 不变,在镀制过程中石英晶体的振动频率随膜层厚度的增加而减小,控制灵敏度逐渐降低,膜厚控制误差变大,因此膜层残余蒸镀量的大小会随膜层厚度的增加而增大,误差累积严重影响薄膜的光谱性能^[12]。

由于残余蒸镀量并不具有严格的重复性,为了更有效地提高膜厚控制精度,通过建立模拟函数来确定残余蒸镀量与膜层厚度之间的关系式,进而对膜系进行修正。根据最小二乘法曲线拟合原理,将膜层厚度与 H_4 残余蒸镀量输入 Matlab 软件,调用 polyfit 函数分别对数据进行了线性拟合、多项式二次拟合和多项式三次拟合。考虑计算量增大会产生误差,选择多项式二次函数作为最优拟合,得到的拟合曲线如图 5 所示, H_4 残余蒸镀量 y_1 与膜层厚度 x 之间的拟合函数关系式为

$$y_1 = -0.1219x^2 + 1.8315x + 0.815. \quad (6)$$

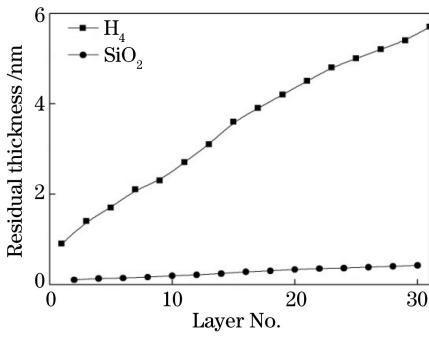


图 4 各层残余蒸镀膜量

Fig. 4 Residual evaporation amount at each layer

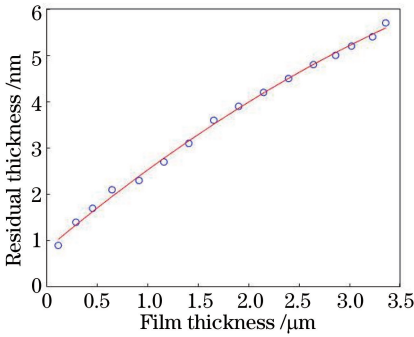


图 5 H_4 残余蒸镀膜量与膜层厚度间的关系

Fig. 5 Residual evaporation amount of H_4 versus film thickness

用同样的方法对 SiO_2 残余蒸镀膜量 y_2 与膜层厚度 x 之间的函数关系进行拟合,得到的拟合曲线如图 6 所示,其拟合函数关系式为

$$y_2 = -0.0066x^2 + 0.1263x + 0.0725. \quad (7)$$

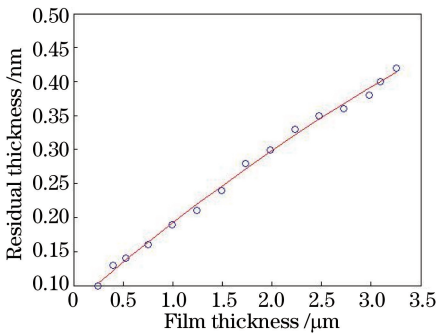


图 6 SiO_2 残余蒸镀膜量与膜层厚度间的关系

Fig. 6 Residual evaporation amount of SiO_2 versus film thickness

通过(6)式与(7)式,可计算出任意膜层厚度所对应的 H_4 和 SiO_2 残余蒸镀膜量,在晶控系统中输入膜层厚度,在理论设计厚度的基础上减去每层的残余蒸镀膜量,再次实验得到前表面光谱曲线,如图 7 所示,光谱性能得到明显改善。

这种提高膜厚控制精度的方法同样适用于晶片

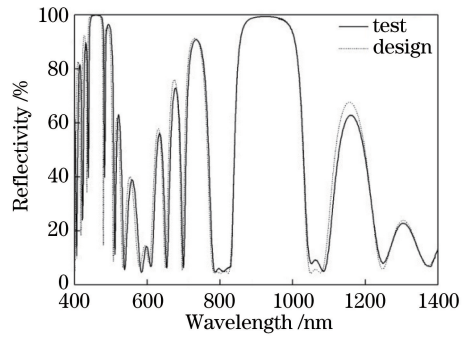


图 7 改进工艺后理论设计曲线与测试曲线对比

Fig. 7 Comparison between theoretically designed curve and test one after technique improvement

后表面增透膜的制备,对膜系进行优化后,最终得到的双面光谱测试曲线如图 8 所示。可以看出,制备的薄膜在 457, 808, 914, 1064, 1342 nm 波长处的反射率依次为 99.9%, 2.8%, 99.6%, 3.2%, 6.9%, 各点的反射率都在要求范围内,满足 457 nm 激光器的使用要求。

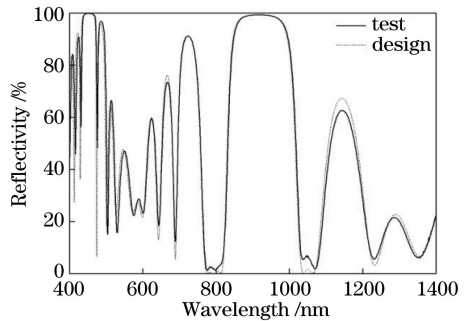


图 8 双面光谱理论设计曲线与测试曲线对比

Fig. 8 Comparison between theoretically designed curve and test one for both-side spectrum

4.2 抗激光测试

采用 S-on-1 测试方式,利用准连续的 808 nm 半导体激光阵列通过整形聚焦进行损伤测试。激光器峰值功率为 1.2 kW,脉宽为 200 μs ,聚焦光斑尺寸为 3.2 mm \times 3.8 mm,测试结果如图 9 所示,通过

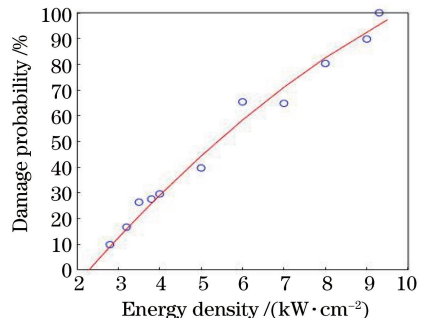


图 9 激光损伤概率

Fig. 9 Laser damage probability

最小二乘拟合计算可得基片的激光损伤阈值为 2.3 kW/cm^2 。

5 结 论

根据倍频反射膜的设计理论,并结合 TFCalc 膜系设计软件对膜系结构进行优化,采用电子束蒸发的方式,在 457 nm 激光器聚光元件上研制出多波段激光腔面高反射膜。基于最小二乘法原理,通过寻找最佳拟合方式,建立了残余蒸镀量与膜层厚度之间的关系式,对膜厚控制误差进行修正,提高了膜厚控制精度,制备的薄膜同时满足对抽运光聚焦和激光腔面高反射的要求。今后的研究方向是通过优化工艺参数,在保证 914 nm 基频光高反射率的基础上,进一步提高 808 nm 抽运光和 1064 nm 强发射谱线的透过率。

参 考 文 献

- [1] Lü Y F, Zhang X H, Yao Z H, *et al.* Laser-diode pumped Nd:YVO₄/BIBO 457 nm blue laser by intracavity doubling [J]. *Laser & Infrared*, 2007, 37(6): 506-507.
吕彦飞, 张喜和, 姚治海, 等. LD 泵浦 Nd:YVO₄/BIBO 腔内倍频 457nm 蓝光激光器[J]. *激光与红外*, 2007, 37(6): 506-507.
- [2] Zeller P, Peuser P. Efficient, multiwatt, continuous-wave laser operation on the $^4F_{3/2} \rightarrow ^4F_{9/2}$ transitions of Nd:YVO₄ and Nd:YAG [J]. *Optics Letters*, 2000, 25(1): 34-36.
- [3] Xue Q H, Bu Y K, Jia F Q, *et al.* Compact efficient 1.5 W continuous wave Nd:YVO₄/LBO blue laser at 457 nm [J]. *Optics Communications*, 2006, 258(1): 67-71.
- [4] Yin H, Zhu S Q, Yang Q G, *et al.* Research on LD-end-pumped 457 nm laser with straight type cavity [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2013, 40(2): 0202003.
尹浩, 朱思祁, 阳其国, 等. LD 抽运直腔式 457 nm 蓝光激光器的实验研究 [J]. *中国激光*, 2013, 40(2): 0202003.
- [5] Fu X H, Huang J L, Mo Z Y, *et al.* Design and fabrication of 589 nm laser optical path integration system filter film [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2013, 40(3): 0307001.
付秀华, 黄金龙, 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.
- [6] Yang Y L, Fu X H, Liu G J, *et al.* Study and fabrication of multi-wavelength laser antireflection film using new mixed material [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2011, 38(10): 1007002.
杨永亮, 付秀华, 刘国军, 等. 采用新型混合材料的多波长激光减反射膜的研制 [J]. *中国激光*, 2011, 38(10): 1007002.
- [7] Liu C L, Wang C W, Wang G D, *et al.* Process investigation of H₄ thin film prepared by electron beam evaporation and application on laser diodes cavity coatings [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2010, 37(12): 3140-3144.
刘春玲, 王春武, 王广德, 等. 电子束蒸镀 H₄ 膜工艺及其在 808 nm 激光器腔面膜上的应用 [J]. *中国激光*, 2010, 37(12): 3140-3144.
- [8] Fu X H, Han F, Zhang J, *et al.* 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.
- [9] Fu X H, Xiong S F, Liu D M, *et al.* Study and fabrication of wide angle and broad spectrum gray adjustment film in infrared imaging system [J]. *Acta Optica Sinica*, 2016, 36(5): 0531001.
付秀华, 熊仕富, 刘冬梅, 等. 大角度宽光谱红外成像系统灰度调节膜的研制 [J]. *光学学报*, 2016, 36(5): 0531001.
- [10] Tang J F, Gu P F, Liu X, *et al.* Modern optical thin film technology [M]. Hangzhou: Zhejiang University Press, 2006: 107-112.
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: 107-112.
- [11] Xiong S F, Fu X H, Liu D M, *et al.* Study and fabrication of narrow-band filter film in methane gas detection and recognition system [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2017, 44(3): 0303003.
熊仕富, 付秀华, 刘冬梅, 等. 甲烷气体探测与识别系统窄带滤光膜的研制 [J]. *中国激光*, 2017, 44(3): 0303003.
- [12] Zhu M P, Yi K, Guo S H, *et al.* Effect of thickness monitoring error and inhomogeneity of witness glass on film thickness monitoring [J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, 26(7): 1107-1111.
朱美萍, 易葵, 郭世海, 等. 膜厚监控误差及监控片不均匀对膜厚监控的影响 [J]. *光学学报*, 2006, 26(7): 1107-1111.