

文章编号: 0253-2239(2007)07-1327-6

三硼酸锂晶体上 1064 nm, 532 nm, 355 nm 三倍频增透膜的设计*

谭天亚^{1,2,3} 黄建兵³ 占美琼³ 邵建达³ 范正修³ 吴 炜^{1,2} 郭永新^{1,2}

1 辽宁大学物理系, 沈阳 110036
2 沈阳市光电子功能器件与检测技术重点实验室, 沈阳 110036
3 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800

摘要: 采用矢量法设计了三硼酸锂晶体上 1064 nm、532 nm 和 355 nm 三倍频增透膜, 结果表明 1064 nm、532 nm 和 355 nm 波长的剩余反射率分别为 0.0017%、0.0002% 和 0.0013%。根据误差分析, 薄膜制备时沉积速率精度控制在 $\pm 5.5\%$ 时, 1064 nm、532 nm 和 355 nm 波长的剩余反射率分别增加至 0.20%、0.84% 和 1.89%。当材料折射率的变化控制在 $\pm 3\%$ 时, 1064 nm 处的剩余反射率增大为 0.20%, 532 nm 和 355 nm 处分别达 0.88% 和 0.24%。与薄膜物理厚度相比, 膜层折射率对剩余反射率的影响大。对膜系敏感层的分析表明, 在 1064 nm 和 355 nm 波长, 从入射介质向基底过渡的第二层膜的厚度变化对剩余反射率的影响最大, 其次是第一膜层。在 532 nm 波长, 第一和第三膜层是该膜系的敏感层。同时发现, 由于薄膜材料的色散, 1064 nm、532 nm 和 355 nm 波长的剩余反射率分别增加至 0.15%、0.31% 和 1.52%。

关键词: 薄膜光学; 三倍频增透膜; 矢量法; 三硼酸锂晶体; 误差分析

中图分类号: O484.4⁺1 文献标识码: A

Design of 1064 nm, 532 nm, 355 nm Frequency-Tripled Antireflection Coating for LBO

Tan Tianya^{1,2,3} Huang Jianbing³ Zhan Meiqiong³ Shao Jianda³ Fan Zhengxiu³
Wu Wei^{1,2} Guo Yongxin^{1,2}

1 Department of Physics, Liaoning University, Shenyang 110036
2 Shenyang Municipal Key Laboratory of Photoelectronic Devices and Detection Technology, Shenyang 110036
3 Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, the Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800

Abstract: 1064 nm, 532 nm, 355 nm frequency-tripled antireflection (AR) coating was designed on LiB₃O₅ (LBO) substrate with vector method. The design result showed that the residual reflectivity at wavelength of 1064 nm, 532 nm and 355 nm could be 0.0017%, 0.0002% and 0.0013%, respectively. According to error analysis, the reflectivity increased to 0.20% at 1064 nm, 0.84% at 532 nm and 1.89% at 355 nm when the precision of deposition rate was controlled at $\pm 5.5\%$. If the refractive index accuracy was $\pm 3\%$, the reflectivity reached 0.20% at 1064 nm, 0.88% at 532 nm and 0.24% at 355 nm, respectively. The refractive index had more effect on the residual reflectivity of the antireflection coating than the physical thickness. From the incident medium to the substrate, the thickness variation of the second layer had the most effect on the reflectivity of the antireflection coating at 1064 nm and 355 nm, followed by the first layer, and the layer next to the substrate was most insensitive. At 532 nm, the first and third layers were the sensitive layers of the antireflection coating design. The reflectance of the antireflection coating at 1064 nm, 532 nm and 355 nm increased to 0.15%, 0.31% and 1.52%, respectively due to the dispersion of the coating materials.

Key words: thin film optics; frequency-tripled antireflection coating; vector method; LBO crystal; error analysis

1 引 言

三硼酸锂(LiB₃O₅, LBO)晶体是一种性能优良

的非线性光学晶体, 有较大的非线性系数, 具有透过波段宽、接受角宽、离散角小、激光损伤阈值高等优

* 辽宁大学科研启动基金(408041)资助课题。

作者简介: 谭天亚(1976—), 女, 土家族, 贵州湄潭人, 副教授, 博士, 主要从事功能薄膜研究。E-mail: tantianya@126.com

收稿日期: 2006-10-25; 收到修改稿日期: 2006-11-10

点^[1],尤其是具有很高的激光损伤阈值^[2]。在近红外、可见光和紫外波段高功率激光的倍频、和频、参量振荡和放大器件以及腔内倍频器件等领域中有广阔的应用前景^[3~7]。

全固态激光器,即二极管抽运固体激光器(Diode pumped laser, DPL),由于具有效率高、体积小、寿命长、光束质量好、输出谱宽、输出光强动态范围大等优势^[8],已经成为新一代的优质相干光源,广泛应用于军事、工业、医疗以及科学研究等领域。典型的二极管抽运固体激光器是由量子阱材料制成特定波长(如808 nm)的大功率 LD 或模块(应用光纤或微透镜将多支 LD 的输出叠加起来,获得高功率输出的构件),激发特定的激光晶体产生激光,同时使用非线性光学晶体变频,获得可见或紫外波段相干辐射。三硼酸锂晶体广泛应用于高功率二极管抽运固体激光器系统。为了减少菲涅耳反射引起的损耗、提高系统的效率,必须在其表面沉积光学薄膜^[9~14]。随着二极管抽运固体激光器小型化、集成化的发展,要求直接在三硼酸锂晶体上研制各种各样的激光薄膜,并且要求薄膜具有多种光学性能,因此需要设计复杂膜系,如多波长增透膜、分离膜等。

本文介绍了三硼酸锂晶体上 1064 nm、532 nm、355 nm 三倍频增透膜的设计,同时研究了薄膜制备过程中膜厚和折射率的变化、每一层膜光学厚度的变化以及薄膜材料的色散对薄膜光学性能的影响。

2 设计原理

2.1 倍频增透膜的一般设计方法

对于层数不多、界面反射系数不大的膜系,在计算其光学性质时,用界面反射系数的矢量合成代替多光束干涉可以得到非常近似的结果。大多数增透膜都能满足这个条件,所以,用矢量法设计增透膜是比较适用的。正入射时,可以得到增透膜方程为

$$r_x = r_0 + \sum_i r_i \cos(2 \sum_i \delta_i) = 0, \quad (1)$$

$$r_y = \sum_i r_i \sin(2 \sum_i \delta_i) = 0, \quad (2)$$

$$(i = 1, 2, 3, \dots),$$

r_0 为第一层膜与空气之间的界面反射系数。 r_i 为膜层之间的界面反射系数,满足

$$r_i = (n_i - n_{i+1}) / (n_i + n_{i+1}), \quad (3)$$

n_i 为第 i 层膜的折射率, n_0 为入射介质,即空气的折射率($n_0 = 1.0$)。 δ_i 为第 i 层膜的相位厚度,可表示为 $2\pi n_i d_i / \lambda$,其中 $n_i d_i$ 为第 i 层膜的光学厚度。正入

射时,采用四分之一波长规整膜系,则 $n_i d_i = \lambda/4$ 。 r_x, r_y 分别为沿 x 轴, y 轴的反射系数之和。

对于一个增透膜,如果相位厚度为 δ 的波长满足增透条件,则在相位厚度为 $\pi - \delta$ 的波长也满足增透条件。据此,可以这样选择膜层厚度,使在波长 λ 处的相位厚度为 δ ,在波长 λ/n 处的相位厚度为 $\pi - \delta$ 。

以上选择规定了膜层的光学厚度,所以倍频增透膜的设计归结为:求解膜层的折射率,使之满足(1)式~(3)式。

2.2 晶体表面倍频增透膜的设计

晶体的空间对称性不同,其介电常量张量的形式也不同,在光学上相应地被分为各向同性晶体、单轴晶体和双轴晶体。根据波法线菲涅耳方程^[15]

$$\frac{k_x^2}{n^{-2} - \epsilon_{xx}^{-1}} + \frac{k_y^2}{n^{-2} - \epsilon_{yy}^{-1}} + \frac{k_z^2}{n^{-2} - \epsilon_{zz}^{-1}} = 0, \quad (4)$$

晶体中相应于某一波法线方向的两个本征模的折射率不相等。式中 k 为平面光波波法线方向的单位矢量值, n 为相应的折射率, $\epsilon_{xx}, \epsilon_{yy}, \epsilon_{zz}$ 为晶体的主介电常量。对于双轴晶体,即介电张量三个主值都不相同的晶体具有两个光轴。若晶体的切割方向为 θ (波法线方向与主轴 z 之间的夹角)和 φ (波法线方向与主轴 x 之间的夹角),则相应的两个传播模的折射率满足关系式

$$\frac{n_1^2 \cos^2 \theta \sin^2 \varphi}{n_x^2} + \frac{n_1^2 \cos^2 \theta \sin^2 \varphi}{n_y^2} + \frac{n_1^2 \sin^2 \varphi}{n_z^2} = 1,$$

$$\frac{n_2^2 \cos^2 \theta}{n_x^2} + \frac{n_1^2 \sin^2 \theta}{n_y^2} = 1, \quad (5)$$

因此,如果已知晶体的主折射率 n_x, n_y 和 n_z ,并知道光波波法线方向,根据(5)式可得到相应的传播模的折射率,再结合 2.1 节的方法进行相应的膜系设计。

3 设计实例

三倍频增透膜是指在波长 $\lambda, \lambda/2$ 和 $\lambda/3$ 同时增

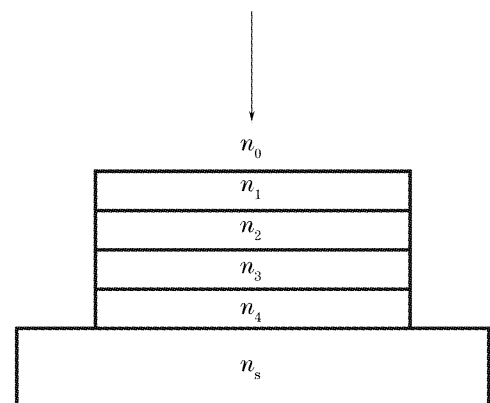


图 1 三倍频增透膜示意图

Fig. 1 Schematic plan of frequency-tripled AR coating

透的薄膜。选择中心波长 λ_0 , 使膜层的光学厚度为 $\lambda_0/4$, 并且使波长 λ 处的相位厚度为 δ , $\lambda/3$ 处的相位厚度为 $\pi - \delta$, 则可求得 $\lambda_0 = \lambda/2$, $\delta = \pi/4$ 。为了便于实现折射率的选择, 采用四层膜来满足设计, 如图 1 所示。

图 2 为该条件下的矢量图, 据此可以建立矢量方程

$$\begin{cases} r_1 - r_3 = 0, \\ r_0 + r_4 - r_2 = 0, \\ r_0 + r_2 + r_4 - r_1 - r_3 = 0, \end{cases} \quad (6)$$

简化得

$$\begin{cases} r_1 = r_2 = r_3, \\ r_0 + r_4 - r_1 = 0, \end{cases} \quad (7)$$

表 1 三硼酸锂晶体上 1064 nm, 532 nm, 355 nm 三倍频增透膜的设计

Table 1 1064 nm, 532 nm, 355 nm frequency-tripled antireflecting coating design for LBO

n_s	n_1	n_2	n_3	n_4	$R_{1064}/\%$	$R_{532}/\%$	$R_{355}/\%$
1.562	1.46	1.63	1.82	2.04	0.0017	0.0002	0.0013
1.589	1.46	1.64	1.84	2.06	0.0065	0.0006	0.0031

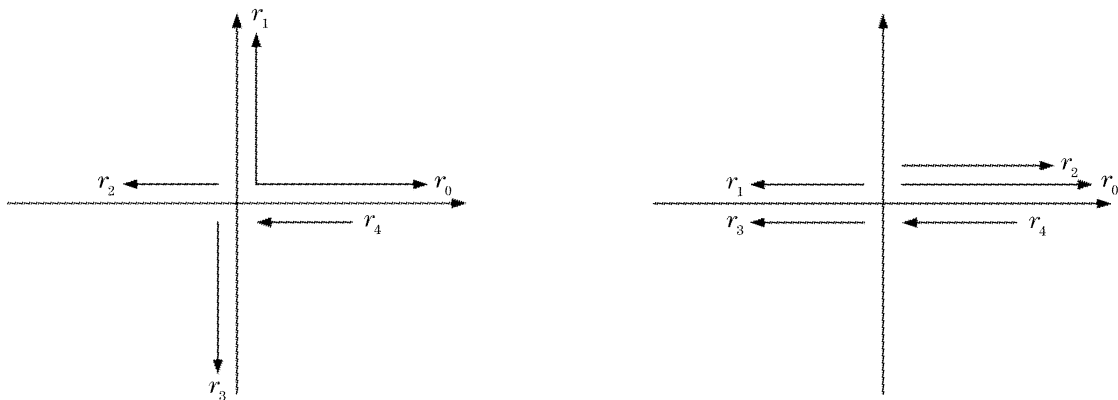


图 2 三倍频增透膜的矢量图

Fig. 2 Vector diagram of frequency-tripled antireflecting coating

4 误差分析

就真空镀膜而言, 若想制备出与理论计算值完全相同的薄膜是不大可能的。膜层折射率的变化会引起整个光谱曲线的变形, 三个极值波长的位置随之变化, 从而增大了特定波长(1064 nm, 532 nm 和 355 nm)的剩余反射率; 薄膜的光学厚度偏差也会影响其剩余反射率, 如果膜厚与计算值有偏差, 那么光谱曲线中的三个极值波长将产生位移。为了确定薄膜的制备精度, 需要分析薄膜制备时的膜厚误差控制、膜料折射率误差控制、敏感层的控制和薄膜材料的色散对光学性能的影响。以下误差分析以膜系 AIR/1.46/1.63/1.82/2.04/ n_s (1.562) 为例。

4.1 膜厚误差对剩余反射率的影响

图 3(a) 为薄膜物理厚度发生均匀变化时剩余

反射率的变化情况。图中的曲线从上向下代表膜厚依次从 +5.5%、+5%、+3%、+1%、0、-1%、-3%、-5% 变化到 -5.5%。从图中可以看出, 当膜厚以均匀分布变化 +5.5% 时, 1064 nm、532 nm 和 355 nm 波长的剩余反射率分别增加至 0.20%、0.84% 和 1.89%。通常激光系统对三硼酸锂晶体上光学薄膜的要求为基频波长的剩余反射率 $R < 0.2\%$, 倍频波长的透射率 $T > 95\%$, 当基频与倍频之间不可避免地相互影响时, 优先考虑基频波长的要求。因此实际制备时应当把膜厚精度控制在 +5.5%。分析发现膜厚发生负变时, 不增大特定波长的剩余反射率。同理, 当薄膜物理厚度发生正态分布变化时的剩余反射率如图 3(b) 所示。图中的曲线从上向下代表膜厚从 +4.5% 变化到 -4.5%。当膜厚以正态分布变化 +4.5% 时, 1064 nm、

532 nm 和 355 nm 波长的处剩余反射率分别达 0.24%、0.94% 和 2.19%。因此实际制备时应当把膜厚

精度控制在 +4.5% 以内。当膜厚发生负变时,不增大特定波长的剩余反射率。

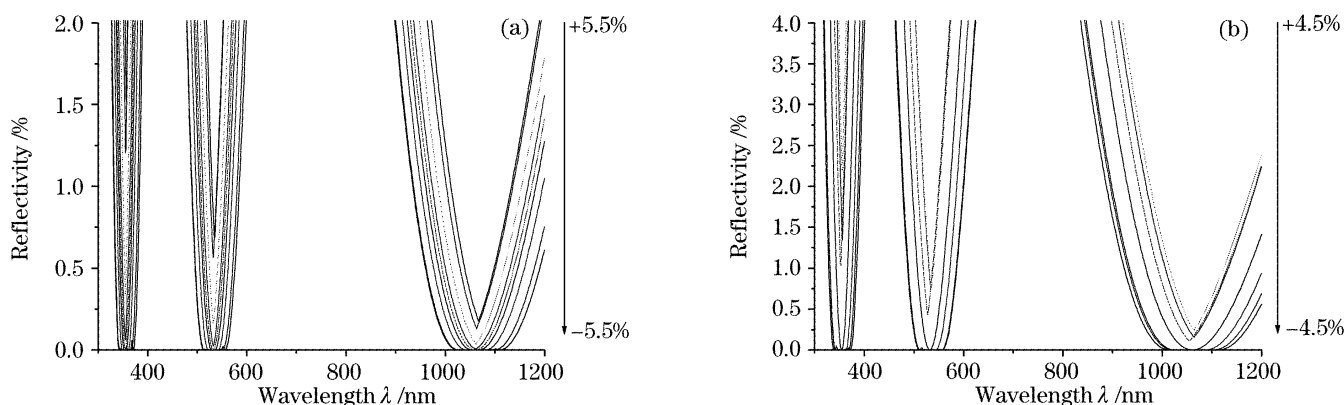


图 3 物理厚度以均匀分布变化 1%、3%、5%、5.5% (a), 以正态分布变化 3%、4%、4.5% (b) 和无变化时的剩余反射率
Fig. 3 Reflectivity when the layer physical thickness varies in a uniform distribution with 1%, 3%, 5%, 5.5% (a), in a normal distribution with 3%, 4%, 4.5% (b) and no deviation

4.2 折射率误差对剩余反射率的影响

图 4(a) 为膜层折射率发生均匀变化时剩余反射率的变化情况。图中的曲线从上向下代表折射率从 +3% 变化到 -3%。从图中可以看出,当折射率以均匀分布变化 +3% 时,1064 nm、532 nm 和 355 nm 处的剩余反射率分别为 0.20%、0.88% 和 0.24%。因此实际制备时应当把折射率精度控制在 +3%。当折射率发生负变时,不增大特定波长的剩余反射率。

当膜层折射率发生正态变化时的剩余反射率如 4(b) 所示,图中的曲线从上向下代表折射率依次从 +1.8%、+1.5%、+1%、0、-1%、-1.5% 变化到 -1.8%。由图可见,当折射率以正态分布变化 +1.8% 时,1064 nm、532 nm 和 355 nm 处的剩余反射率分别达到 0.22%、0.63% 和 0.26%。因此实际制备时应当把折射率精度控制在 +1.8% 以内。当折射率发生负变时,不增大特定波长的剩余反射率。

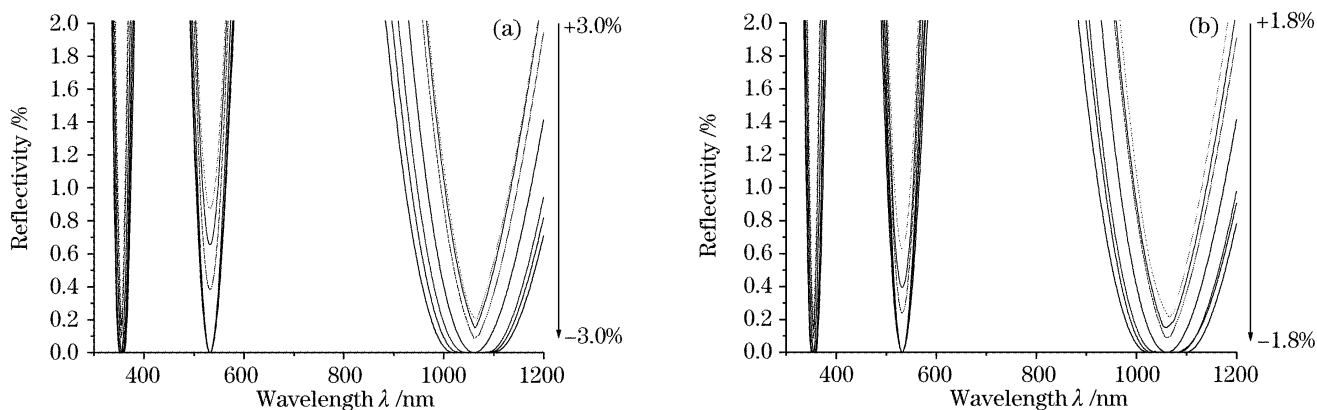


图 4 折射率以均匀分布变化 2%、2.5%、3% (a), 以正态分布变化 1%、1.5%、1.8% (b) 和无变化时的剩余反射率
Fig. 4 Reflectivity when the refractive index varies in a uniform distribution with 2%, 2.5%, 3% (a), in a normal distribution with 1%, 1.5%, 1.8% (b) and no deviation

从上述薄膜物理厚度和膜层折射率的误差分析表明,后者对剩余反射率的影响大于前者。同时发现无论是薄膜物理厚度还是膜层折射率,正态分布变化带来的误差对剩余反射率的影响比均匀分布变化大。

4.3 特定层膜的厚度误差对剩余反射率的影响

图 5 为特定层膜光学厚度增加和减少 16% 时剩余反射率的变化情况。横坐标从左向右表示从基底向入射介质过渡。图中曲线每一个点说明仅该点处

的膜层光学厚度发生变化而其他膜层不变。(a)、(b) 和 (c) 分别是波长在 1064 nm、532 nm、355 nm 的变化情况。从图 5(a) 和图 5(c) 可以看出,在 1064 nm 和 355 nm 波长,从入射介质向基底过渡的第二层膜的光学厚度对剩余反射率的影响最大,其次是第一膜层,而靠近基底的膜层,即高折射率材料层对薄膜剩余反射率的影响最小。但在 532 nm 波长,从图 5(b) 可见,每一层膜光学厚度的正负变化对剩余反射率的影响相同。并发现,从入射介质向基底

过渡的第一和第三膜层是该膜系的敏感层。因此应根据实际的应用需求选择薄膜制备工艺,以提高特定膜层的控制精度。误差分析结果表明,当第二膜层的光学厚度变化 +16% 和 -16% 时,1064 nm 处

的反射率分别从 0.0017% 增加到 0.23% 和 0.29%。在 532 nm 波长膜层厚度的正负变化对剩余反射率的影响相同,但在 1064 nm 和 355 nm 波长,膜厚控制的负变化对剩余反射率的影响大于正变化。

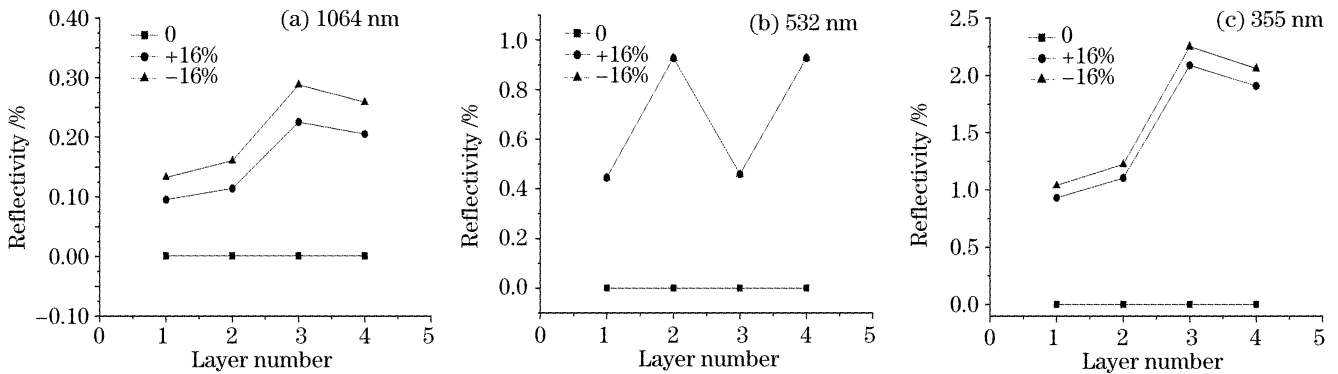


图 5 某一层膜厚增加和减少 16% 时剩余反射率的变化

Fig. 5 Residual reflectance variation when a single layer thickness is increased and decreased by 16%

4.4 薄膜材料的色散对剩余反射率的影响

图 6 为薄膜材料的色散对薄膜剩余反射率的影响曲线。图中曲线(a)表示忽略膜层材料的色散获得的反射光谱,曲线(b)表示考虑膜系设计中从入射介质向基底过渡的第二层、第三层和第四层薄膜材料,即折射率为 n_2 、 n_3 和 n_4 的膜层在实际制备过程中的色散^[17]后薄膜的反射光谱。由图 6 可见,薄膜材料的色散对剩余反射率有较大影响。由于极值波长的位置发生变化,增大了基频、二倍频和三倍频波长的剩余反射率,即 1064 nm、532 nm、355 nm 波长的剩余反射率分别从 0.0017%、0.0002%、0.0013% 增至 0.15%、0.31% 和 1.52%。在对薄膜增透性能要求高的情况下,为了减小薄膜材料的色散对薄膜光学性质带来的影响,可采取改变监控波长或修正膜系设计等措施。

5 结 论

利用矢量法,采用四层四分之一波长($\lambda/4$)规整膜系,通过设计,三硼酸锂晶体上 1064 nm、532 nm、355 nm 三倍频增透膜的光学性质可达到剩余反射率 R_{1064} 为 0.0017%, R_{532} 为 0.0002%, R_{355} 为 0.0013%。同时由误差分析可知,折射率的变化对剩余反射率的影响大于膜层厚度,但折射率和膜厚的负变化都不会增大特定波长的剩余反射率。特定波长不同,膜系的敏感层不同,薄膜制备过程中要根据实际应用来控制相应膜层的厚度精度。为了减小薄膜制备过程中薄膜材料的色散对剩余反射率的影响,可通过改变监控波长或修正膜系设计来获得增透性能更加优异的薄膜。

参 考 文 献

- 1 Yasunori Furukawa, Steven A. Markgraf, Masayoshi Sato *et al.*. Investigation of the bulk laser damage of lithium triborate, LiB_3O_5 , single crystals[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1994, **65**(12): 1480~1482
- 2 Tang Dingyuan. Research progress on growth of UV nonlinear optical borate crystals[J]. *Chin. J. Struct. Chem.*, 1995, **14**(5~6): 454~462 (in Chinese)
唐鼎元. 紫外非线性光学材料硼酸盐晶体生长的研究进展[J]. *结构化学*, 1995, **14**(5~6): 454~462
- 3 Chen Yahui, Hou Wei, Peng Haibo *et al.*. Generation of 2.1 W continuous wave blue light by intracavity doubling of a diode-end-pumped Nd:YAG laser in a 30 mm LBO[J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2006, **23**(6): 1479~481
- 4 Haibo Peng, Wei Hou, Yahui Chen *et al.*. Generation of 7.6-W blue laser by frequency tripling of a Nd:YAG laser in LBO crystals[J]. *Opt. Express*, 2006, **14**(14): 6543~6549
- 5 Yikun Bu, Quan Zheng, Qinghua Xue *et al.*. Diode-pumped 593.5 nm CW yellow laser by type-I CPM LBO intracavity sum-frequency-mixing[J]. *Opt. Laser Technol.*, 2006, **38**(8): 565~

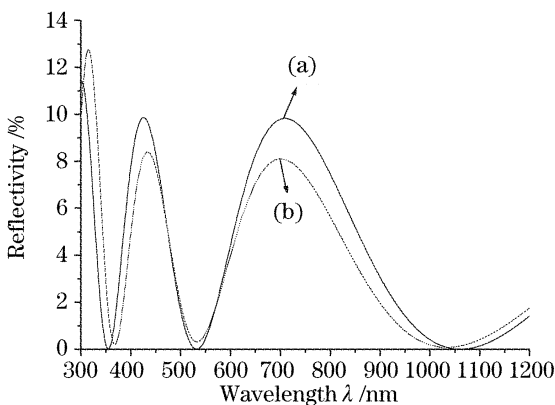


图 6 薄膜材料的色散对剩余反射率的影响

Fig. 6 Influence of coating material dispersion on the residual reflectivity

568

- 6 H. Q. Li, H. B. Zhang, Z. Bao *et al.*. High-power nanosecond optical parametric oscillator based on a long LiB₃O₅ crystal[J]. *Op. Commun.*, 2004, **232**: 411~415
- 7 Liu Hongjun, Chen Guofu, Zhao Wei *et al.*. Study of noncollinearly phase-matched LiB₃O₅ femto-second optical parametric amplifier[J]. *Acta Optica Sinica*, 2002, **22**(10): 1195~1201 (in Chinese)
刘红军,陈国夫,赵卫等. 非共线相位匹配 LBO 晶体飞秒光参变放大器的研究[J]. *光学学报*, 2002, **22**(10): 1195~1201
- 8 Zheng Quan, Chen Yinxin, Qian Longsheng. Industrial development trends of all solid lasers[J]. *OME Information*, 2001, (2): 17~20 (in Chinese)
郑权,陈颖新,钱龙生. 全固态激光器产业发展的趋势[J]. *光机电信息*, 2001, (2): 17~20
- 9 Y. Chen, H. Peng, W. Hou *et al.*. 3.8 W of cw blue light generated by intracavity frequency doubling of a 946-nm Nd:YAG laser with LBO[J]. *Appl. Phys. B (Lasers and Optics)*, 2006, **B83** (2): 241~243
- 10 Zhipei Sun, Ruining Li, Yong 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
- 11 J. C. Bienfang, C. A. Denman, B. W. Grime *et al.*. 20 Watt CW all-solid-state 589-nm sodium beacon excitation source based on doubly resonant sum-frequency generation in LBO[J]. *Trends in Optics and Photonics Series* [2003 OSA Topical Meeting on Advanced Solid-State Photonics (ASSP)], 2003, **83**: 111~120
- 12 Tan Huiming, Zheng Quan, Chen Yinxin *et al.*. Double frequency 671 nm laser with type I critical phase matching LBO [J]. *Chin. J. Lasers*, 2002, **A29**(4): 289~292 (in Chinese)
檀慧明,郑权,陈颖新等. LBO I类临界相位匹配倍频 671 nm 激光器[J]. *中国激光*, 2002, **A29**(4): 289~292
- 13 Nicolaie Pavel, Jiro Saikawa, Takunori Taira. Diode end-pumped passively Q-switched Nd:YAG laser intra-cavity frequency doubled by LBO crystal[J]. *Opt. Commun.*, 2001, **195**: 233~240
- 14 Jie Jiang, Toshifumi Hasama. High repetition-rate femtosecond optical parametric oscillator based on LiB₃O₅ [J]. *Opt. Commun.*, 2002, **211**: 295~302
- 15 Shi Shunxiang, Chen Guofu, Liu Jifang. *Nonlinear Optics* [M]. First edition, Xian: Xidian University Press, 2003. 75~86 (in Chinese)
石顺祥,陈国夫,刘继芳. *非线性光学* [M]. 第一版,西安:西安电子科技大学出版社,2003. 75~86
- 16 Tan Tianya, Yi Kui, Shao Jianda *et al.*. Measurement of refractive index of the optical crystal with spectrophotometer[J]. *Chin. J. Lasers*, 2005, **32**(12): 1678~1682 (in Chinese)
谭天亚,易葵,邵建达等. 利用分光光度计测量光学晶体的折射率[J]. *中国激光*, 2005, **32**(12): 1678~1682
- 17 Yuan Jingmei. Preparation and study of UV high-reflection mirrors[D]. Shanghai: Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, 2003. 20~25 (in Chinese)
袁景梅. 高光学性能紫外高反薄膜元件的研制[D]. 上海:上海光学精密机械研究所,2003. 20~25