

文章编号: 0253-2239(2009)07-2022-04

LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜的制备和性能

谭天亚^{1,2} 邵建达³ 范正修³ 于撼江^{1,2} 吴 炜^{1,2} 郭永新^{1,2}

¹ 辽宁大学物理学院, 辽宁 沈阳 110036

² 沈阳市光电子功能器件与检测技术重点实验室, 辽宁 沈阳 110036

³ 中国科学院上海光学精密机械研究所光学薄膜技术研发中心, 上海 201800

摘要 采用电子束蒸发方法在三硼酸锂(LBO)晶体上制备了 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜。利用 Lambda900 分光光度计、MTS Nano Indenter 纳米力学综合测试系统以及调 Q 脉冲激光装置对样品的光学性能、附着力和激光损伤阈值进行了分析测试。结果表明, 通过多次实验, 不断改进薄膜沉积工艺条件, 在 LBO 晶体上获得了综合性能优异的二倍频增透膜。样品在 1064 nm, 532 nm 波长的剩余反射率分别为 0.07% 和 0.16%, 薄膜粘附失效的临界附着力和激光损伤阈值分别为 137.4 mN 和 15.14 J/cm², 薄膜激光损伤发生在 Al₂O₃ 膜层。

关键词 薄膜光学; 二倍频增透膜; LBO 晶体; 附着力; 激光损伤阈值

中图分类号 O484.4⁺1 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS20092907.2022

Study on Preparation and Performances of 1064 nm, 532 nm Frequency-doubled Antireflection Coating for LBO

Tan Tianya^{1,2} Shao Jianda³ Fan Zhengxiu³

Yu Hanjiang^{1,2} Wu Wei^{1,2} Guo Yongxin^{1,2}

¹ Faculty of Physics, Liaoning University, Shenyang, Liaoning 110036, China

² Shenyang Key Laboratory of Photoelectronic Devices and Detection Technology, Shenyang, Liaoning 110036, China

³ R & D Center for Optical Thin Film Coatings, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

Abstract 1064 nm, 532 nm frequency-doubled antireflection coating was fabricated by using electron-beam evaporation on LiB₃O₅ (LBO). The optical property, adhesion and laser-induced damage threshold were determined by Lambda 900 spectrometer, MTS Nano Indenter and Q-switched pulse laser, respectively. The results showed that 1064 nm, 532 nm frequency-doubled antireflection coating with good performances are obtained by improving deposition parameters. The reflectance of the coating at wavelength of 1064 nm and 532 nm are 0.07% and 0.16%. The critical adhesion and the laser-induced damage threshold are 137.4 mN and 15.14 J/cm². It is found that the damage of the coating locates in the layer of Al₂O₃.

Key words thin film optics; frequency-doubled antireflection coating; LiB₃O₅ crystal; adhesion; laser-induced damage threshold

1 引言

三硼酸锂(LBO)晶体是中国发现的一种性能优

良的非线性光学晶体^[1], 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

收稿日期: 2008-09-09; 收到修改稿日期: 2008-11-27

基金项目: 辽宁省教育厅科研计划(2008224)和沈阳市科学技术计划(1071115-1-00)资助课题。

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

领域中具有广阔的应用前景^[3~7]。全固态激光器由于具有效率高、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。LBO 晶体广泛应用于高功率全固态激光器系统, 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]。随着全固态激光器小型化、集成化的发展, 要求直接在 LBO 晶体上研制光学薄膜, 除了要求薄膜具有良好的光学性能外, 根据 LBO 晶体的应用领域和运作状态, 还要求薄膜具有高的激光损伤阈值和好的牢固度。

根据利用矢量法对 LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜的设计: AIR/LMH/LBO, H、M、L 分别代表光学厚度为 $\lambda/4$ 的高、中、低折射率材料, λ 为 709 nm, n_H , n_M 和 n_L 分别为 1.98, 1.70 和 1.46^[15], 采用电子束蒸发方法, 选用 ZrO_2 , Al_2O_3 和 SiO_2 分别作为高、中、低折射率材料, 制备了 LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜, 并对样品的光学性能、附着力、激光损伤阈值以及损伤形貌进行了分析。

2 实 验

镀膜在北京真空仪器厂生产的 DMD-450 型光学镀膜机上进行, 采用传统的电子束蒸发沉积技术。经过优化, 薄膜沉积温度为 200 °C, 本底真空均为 4×10^{-3} Pa。单层膜工艺实验确定沉积 ZrO_2 和 Al_2O_3 膜层时分别充氧至 2×10^{-2} Pa 和 5×10^{-3} Pa, 沉积 SiO_2 膜层时不充氧气。镀膜前 LBO (001) 晶体依次用石油醚、丙酮超声清洗并擦干。

使用 Perkin Elmer 公司生产的 Lambda900 分光光度计(仪器透射率测量精度为 $\pm 0.08\%$, 相对反射率测量精度为 $\pm 0.3\%$) 测量样品的剩余反射率, 波长分辨率为 1 nm, 测量范围为 400~1200 nm。

薄膜的附着力测试采用 MTS Nano Indenter 系统的划入 LFM 组件, 用金刚石玻氏划针对样品进行纳米划入。控制参数为线性增加的法向力, 最大值为 200 mN, 划针以 10 $\mu\text{m/s}$ 横向匀速移动, 垂直作用在样品上的载荷在长 500 μm (即 100~600 μm) 范围从 100 μN 线性增至 200 mN, 得到相应的划入深度随划入位置的变化。当划入深度曲线剧烈波动, 说明薄膜破裂, 有碎片剥落。此处的法向力定义为薄膜附着失效的临界附着力。

采用 1-on-1 激光损伤测试方法进行激光损伤

阈值测试。测试采用激光波长为 1064 nm, 入射角为 0, 重复频率为 1 Hz, 脉冲宽度为 12 ns, 靶面有效光斑直径为 0.4 mm, 模式为 TE₀₀, 最大脉冲能量为 100 mJ, 能量稳定度误差小于 5%。脉冲激光经过能量衰减系统以及透镜聚焦到样品表面, 并用能量计记录入射到样品的激光能量。激光在样品表面的辐照间隔为 1.5 mm, 共计测量 5×5 个点。损伤阈值定义为 0% 损伤概率时的入射脉冲能量密度。用最小二乘法线性拟合外推得到 0 概率损伤阈值, 误差范围为 $\pm 15\%$ 。

激光损伤阈值测试完毕后采用 Leica-DMRXZ 偏光显微镜观测破斑形貌, 用 Veeco 公司的 WYKO 表面轮廓仪获得破斑的深度信息。

3 结果和讨论

图 1 为电子束蒸发沉积的 LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜的反射率测量结果。由图可见, 样品在 1064 nm, 532 nm 波长的剩余反射率分别为 0.07% 和 0.16%, 能满足实际应用对薄膜器件的光学性能的要求。

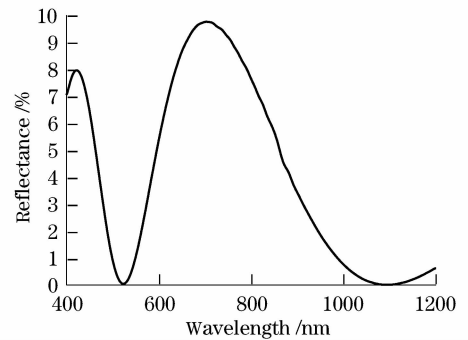


图 1 LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜的反射率曲线

Fig. 1 Reflectance of 1064 nm, 532 nm frequency-doubled antireflection coating for LBO

样品的纳米划入附着力测试结果如图 2 所示。由图 2 可见, 从位置为 443.2 μm 开始, 划入曲线剧烈波动, 说明薄膜发生破裂, 有碎片剥落。表明该位置对应于薄膜和基底的分离, 对应的法向力为 137.4 mN, 为该薄膜粘附失效的临界附着力。

LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜的激光损伤阈值测量结果如图 3 所示。从图中可以看出, 薄膜的激光损伤阈值为 15.14 J/cm^2 。薄膜的典型激光损伤形貌如图 4 所示, 样品的损伤形貌表现为薄膜炸裂, 呈现出尖锐的裂痕, 有些膜屑崩飞, 有些仍残留在样品表面。图 5 为利用 WYKO

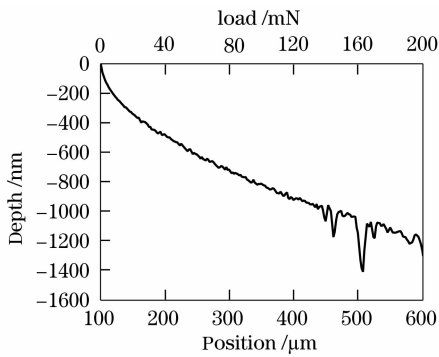


图 2 LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜的纳米划痕曲线

Fig. 2 Nano-scratch of 1064 nm, 532 nm frequency-doubled antireflection coating for LBO

表面轮廓仪测得相应的薄膜破斑的深度信息, 可见薄膜破斑深度约为 138 nm。根据膜系设计, ZrO_2 、 Al_2O_3 和 SiO_2 膜层的厚度分别约为 121.4、104.3 和 89.5 nm, 可见损伤发生在 Al_2O_3 膜层。为了分析薄膜的抗激光损伤机制, 对薄膜的电场分布进行了模拟分析, 如图 6 所示。从图 6 中可以看出, 薄膜

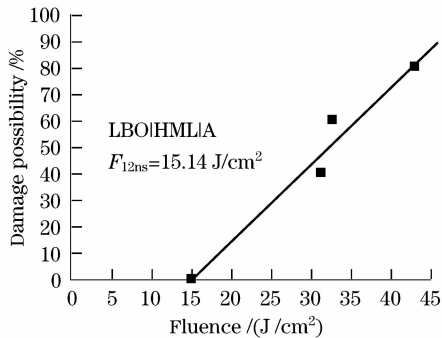


图 3 LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜的抗激光损伤阈值曲线

Fig. 3 Laser-induced damage threshold of 1064 nm, 532 nm frequency-doubled antireflection coating for LBO

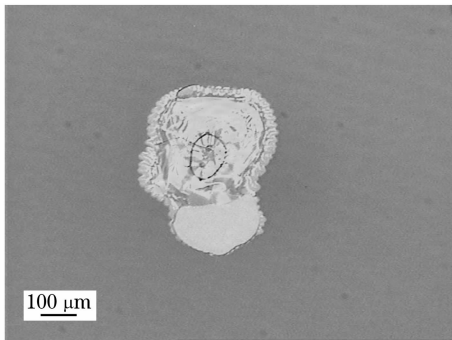


图 4 LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜激光损伤形貌

Fig. 4 Laser-induced damage morphology of 1064 nm, 532 nm frequency-doubled antireflection coating for LBO

的电场贯穿整个膜堆, 膜堆中每个位置都有较强的电场存在, 如果在某个位置出现吸收源(杂质缺陷或者界面吸附层), 那么破坏就很可能发生。这就对每一层膜的质量和膜层之间的结合力都提出了更高的要求。结合图 5 所示的薄膜激光损伤破斑的深度信息分析, 在 LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜的制备过程中, Al_2O_3 膜层的质量对该薄膜的激光损伤阈值具有决定性影响, 改进 Al_2O_3 膜层的制备有利于进一步提高该薄膜的激光损伤阈值。

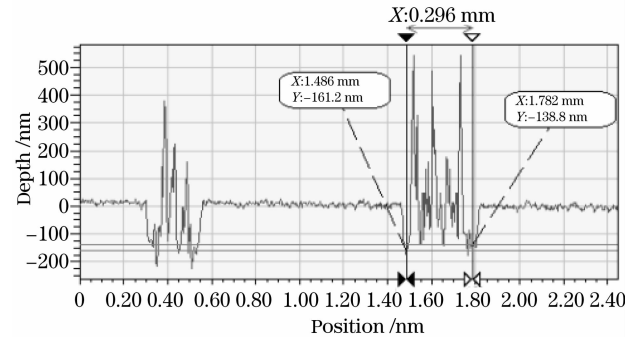


图 5 LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜的损伤破斑的深度信息

Fig. 5 Depth information of laser-induced damage zone of 1064 nm, 532 nm frequency-doubled antireflection coating for LBO

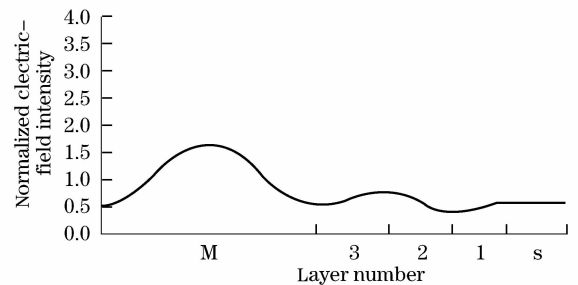


图 6 LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜的电场分布

Fig. 6 Electric-field distribution of 1064 nm, 532 nm frequency-doubled antireflection coating for LBO

4 结 论

根据矢量法设计的膜堆, 采用电子束蒸发方法制备了 LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜, 并对制备的薄膜进行了性能测试。通过优化制备工艺参数, 薄膜的光谱特性曲线表明基频 1064 nm 和二倍频 532 nm 波长的剩余反射率分别为 0.07% 和 0.16%。LBO 晶体与薄膜之间附着牢固, 粘附失效的临界附着为 137.4 mN。薄膜的抗激光损伤阈值为 15.14 J/cm², 激光损伤形貌观

察和深度信息分析表明薄膜的激光损伤位于 Al_2O_3 膜层。由薄膜的电场分布分析可知, 电场贯穿整个膜堆, 膜堆中每个位置都有较强的电场存在, 如果在某个位置出现吸收源(杂质缺陷或者界面吸附层), 那么破坏就很可能在该位置发生。可见, 通过改进 Al_2O_3 膜层的质量, 将会进一步提高 LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜的抗激光损伤特性。

参 考 文 献

- Chen Chuangtian, Wu Yicheng, Jiang Aidong *et al.*. New nonlinear optical crystal LiB_3O_5 [J]. *J. Opt. Soc. Am.*, 1989, **B6**(4): 616~621
- Tang Dingyuan. Research progress on growth of UV nonlinear optical borate crystals[J]. *Chinese J. Struct. Chem.*, 1995, **14**(5~6): 454~462
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
- Chang Dongxia, Liu Xia, Wang Yu *et al.*. All-Solid-State CW intracavity frequency-doubled and frequency-stabilized Nd: YVO_4 /LBO red laser[J]. *Chin. J. Lasers*, 2008, **35**(4): 323~327
常冬霞, 刘 侠, 王 宇等. 连续波 Nd: YVO_4 /LBO 稳频倍频红光全固态激光器[J]. *中国激光*, 2008, **35**(4): 323~327
- Wang Wei, Liu Gang, Liu Yingtong. Laser diode pumped Nd: YVO_4 /LBO green laser[J]. *Chin. J. Lasers*, 2007, **34**(5): 646~648
王 巍, 刘 钢, 刘英同. 激光二极管抽运的 Nd: YVO_4 /LBO 绿光激光器[J]. *中国激光*, 2007, **34**(5): 646~648
- 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
- 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): 565~568
- H. Q. Li, H. B. Zhang, Z. Bao *et al.*. High-power nanosecond optical parametric oscillator based on a long LiB_3O_5 crystal[J]. *Opt. Commun.*, 2004, **232**(1-6): 411~415
- Liu Hongjun, Chen Guofu, Zhao Wei *et al.*. Study of noncollinearly phase-matched LiB_3O_5 femto-second optical parametric amplifier[J]. *Acta Optica Sinica*, 2002, **22**(10): 1195~1201
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
- Zheng Quan, Chen Yingxin, Qian Longsheng. Industrial development trends of all solid lasers[J]. *OME Information*, 2001, **12**: 17~20
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, **12**: 17~20
- 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
- Zhipai 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
- 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[C]. *Trends in Optics and Photonics Series*, 2003, **83**: 111~120
- Tan Huiming, Zheng Quan, Chen Yingxin *et al.*. Double frequency 671 nm laser with type I critical phase matching LBO [J]. *Chin. J. Lasers*, 2002, **A29**(4): 289~292
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
- 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
- Jie Jiang, Toshifumi Hasama. High repetition-rate femtosecond optical parametric oscillator based on LiB_3O_5 [J]. *Opt. Commun.*, 2002, **211**: 295~302
- Tan Tianya, Huang Jianbing, Zhan Meiqiong *et al.*. Design and error analysis of 1064 nm, 532 nm frequency-doubled antireflection coating for LBO[J]. *Chin. J. Lasers*, 2006, **33**(2): 242~247
谭天亚, 黄建兵, 占美琼等. LBO 晶体上 1064 nm, 532 nm 二倍频增透膜的设计及误差分析[J]. *中国激光*, 2006, **33**(2): 242~247