

热压法制备的碲酸盐玻璃微盘*

胡博¹⁾²⁾³⁾ 吴越豪^{1)2)3)†} 郑雨璐¹⁾²⁾³⁾ 戴世勋²⁾³⁾

1) (宁波大学信息科学与工程学院, 宁波 315211)

2) (宁波大学高等技术研究院, 红外材料及器件实验室, 宁波 315211)

3) (浙江省光电探测材料及器件重点实验室, 宁波 315211)

(2019年7月9日收到; 2019年9月29日收到修改稿)

提出一种热压法制备微盘激光器的工艺, 仅使用实验室常用电阻加热炉具即可制备出不同直径/厚度的微盘激光器. 选用 $\text{TeO}_2\text{-ZnO-Na}_2\text{O}$ 碲酸盐玻璃为基质材料, 制备出直径分布在 100—400 μm 范围内、最小厚度可达 8 μm 、典型品质因数 (Q 值) 约为 10^5 的微盘激光器. 对碲酸盐玻璃基质材料掺入稀土离子 Nd^{3+} 和 Tm^{3+} , 通过光纤锥耦合开展微盘的抽运耦合实验, 即可在耦合系统的输出光谱中获得明显的荧光回廊模式和激光模式. 以一颗直径为 105.74 μm 、厚度为 10.4 μm 的 Nd^{3+} 掺杂微盘为例, 当抽运光功率提升至 1.364 mW 以上时, 即可在 1.06 μm 附近获得激光峰. 同样实验表明, 对 Tm^{3+} 掺杂的微盘进行抽运耦合实验可获得 1.9 μm 附近的激光峰.

关键词: 热压法, 微盘激光器, 回廊模, 碲酸盐玻璃

PACS: 42.70.-a, 81.05.-t, 42.50.-p

DOI: 10.7498/aps.68.20191051

1 引言

回廊模式谐振腔在低阈值激光器、窄带光学滤波、生物化学传感等领域有着重要应用^[1-5]. 在各种类型的回廊模谐振腔中, 球形 (spherical) 谐振腔可实现极高的品质因数 (Q 值), 且其制备工艺较为简单, 因而最先受到研究者的关注. 现有球形回廊模谐振腔中可获得最高 Q 可达 10^9 ^[6]. 可以采用多种性质各异的基质材料制作球形回廊模谐振腔, 例如以碲酸盐玻璃、硫系玻璃为代表的新型红外光学材料, 因其具有良好的红外透过性和较好的稀土离子溶解性而被广泛用于制备工作于近红外和中波红外波段的球形回廊模谐振腔/激光器^[7-12].

随着研究的深入, 研究者发现相比于常规的球形回廊模谐振腔, 环形 (toroidal) 或者盘形 (disk)

回廊模谐振腔具有更加扁长的横截面形状, 因而更有利于减小回廊模的模式体积 (V_m). 对于微腔量子电动力学来说, 较小的 V_m 意味着较大的 Q/V_m 比值, 而较大的 Q/V_m 比值则意味着回廊模谐振腔可以更好地与微纳光子器件耦合以及更容易在微腔中实现光学非线性效应^[13,14]. 环形或者盘形谐振腔虽然具有更好的光学特性, 但是它们的制备工艺也远比球形谐振腔复杂, 通常涉及到半导体沉积、光刻、刻蚀、激光热回流等步骤^[15-18]. 制备有源环形/盘形回廊模谐振腔则需使用离子注入工艺将有源掺杂物质注入到半导体基质材料中, 整个工艺流程更加昂贵费时.

为了降低微盘谐振腔的制备难度以及缩短制备时间, 提出一种基于玻璃粉料的热压法制作微盘谐振腔的工艺. 这种热压法主要涉及到两个加热步骤: 1) 利用漂浮粉末熔融法的基本原理加热玻璃

* 国家自然科学基金青年基金 (批准号: 61605094)、国家自然科学基金重点项目 (批准号: 61435009) 和宁波大学王宽诚幸福基金资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wuyuehao@nbu.edu.cn

粉料, 受热软化后的粉料在表面张力作用下成为微球状; 2) 将所制备的微球置于两面平整光滑的硬物表面之间进行第二次加热. 第二次加热时需对微球施加一定外部压力, 使得受热软化后的微球在外部压力作用下挤成盘状. 考虑到实验室炉具的温度限制 ($< 450\text{ }^{\circ}\text{C}$), 选用了一种组分为 $\text{TeO}_2\text{-ZnO-Na}_2\text{O}$ 的碲酸盐玻璃为基质材料. 此玻璃的软化温度较低 ($\sim 370\text{ }^{\circ}\text{C}$), 且在多次加热的过程中不易出现析晶问题. 实验制备出的碲酸盐玻璃微盘谐振腔直径在 $100\text{--}400\text{ }\mu\text{m}$ 范围之内, 最小厚度约为 $8\text{ }\mu\text{m}$, 典型 Q 值约为 10^5 . 在基质材料中掺入 Nd^{3+} , Tm^{3+} 等稀土离子即可获得有源微盘谐振腔. 通过光纤锥耦合法对有源微盘微腔进行抽运耦合实验, 即可在耦合系统的输出光谱中观测到周期分立的光学回廊模式. 当抽运光功率超出谐振腔的激光阈值后, 即可在输出光谱中观测到明显的激光模式. 上述实验结果表明, 对于软化温度低且不易于析晶的玻璃基质材料, 本文提出的基于玻璃粉料的热压法可作为一种简单可行的方法用于制备微盘谐振腔/激光器.

2 实验

将制备碲酸盐玻璃的原材料混合置于刚玉坩埚中, 在 $850\text{ }^{\circ}\text{C}$ 的温度下加热 30 min , 之后将玻璃液倒入石墨模具中以 $350\text{ }^{\circ}\text{C}$ 的温度退火 2 h . 再将玻璃冷却至室温, 研磨成粉、清洗烘干后送入一台自制的高温垂直加热炉, 进行第一次加热. 玻璃粉料在高温垂直炉中软化, 在表面张力作用下形成微球状. 第一次加热的过程即为常用的漂浮粉末熔融微球制备法^[9–12]. 数百枚高质量的碲酸盐微球可以一次性地从这一次的加热过程中获得. 图 1 为一批实验制备的碲酸盐玻璃微球的显微镜照片图. 图 1 的内插图为一颗直径为 $92.13\text{ }\mu\text{m}$ 的典型微球的扫描电子显微镜 (SEM) 图.

从图 1 及其内插图可见, 第一次加热后获得的微球具有良好的外观形状. 从实验获得的微球中优选出表面平滑、球形度较好的微球放入两片边长为 10 mm 的正方形硅片之间, 再将其放入一台箱式电炉 (Nabertherm, 型号: N60/45HA) 中进行第二次加热. 通过反复调整加热温度、时间以及外界施压的重物质量等实验参数, 最终选定用于第二次加热压球的温度为 $370\text{ }^{\circ}\text{C}$, 加热时间为 15 min , 外界重物质量约为 40 g . 在上述实验条件下, 微球在

电炉中逐渐软化并在外界压力作用下被压制为盘状. 图 2 为第二次加热的实验过程.

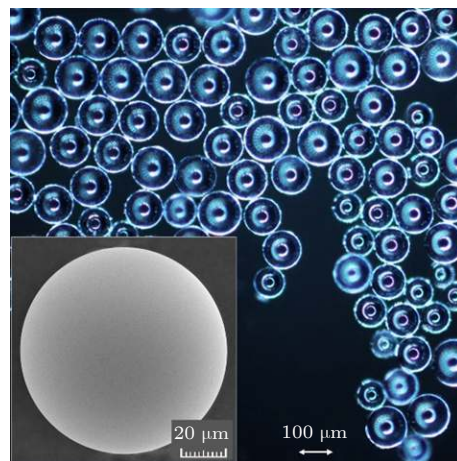


图 1 实验制备的一批典型的碲酸盐玻璃微球 (内插图为一颗直径为 $92.13\text{ }\mu\text{m}$ 的碲酸盐玻璃微球的 SEM 图)

Fig. 1. A typical batch of tellurite glass microspheres fabricated in this work. Inset: SEM image of a $92.13\text{-}\mu\text{m}$ diameter tellurite glass microdisk laser.

从图 2 可以看出, 第二次加热的过程分为置球、固定/压球、冷却、揭片 4 个操作流程. 在置球流程中, 将微球置于两片清洁干净的硅片表面之间. 硅片表面平整坚硬, 且不易在第二次加热过程中产生破损或形变, 因此适合用作压制微盘的模具. 在固定/压球流程中, 用铜片将硅片及置于其间的微球进行包裹固定, 以避免在压球过程中由于上下硅片之间的相对滑动影响微盘的圆形体. 将固定好的压球装置放入预热好的电炉中 (加热温度 $370\text{ }^{\circ}\text{C}$, 加热时间 15 min), 并放上质量合适的重物 (40 g) 以使得微球在合适的温度和压力条件下逐渐被硬质平整表面挤压成扁平的盘型. 前期实验表明, 过高的加热温度、过长的加热时间或者过重的外置重物都会造成受热软化后的碲酸盐玻璃和硅片之间产生材料粘连, 导致后续的揭片流程难以开展; 而过低的加热温度、过短的加热时间或者过轻的外置重物则会导致微球无法充分软化变形, 容易形成过厚或者破损的微盘. 图 3(a) 为一个由半径 (R_{sphere}) 为 $50.78\text{ }\mu\text{m}$ 的微球压出的半径 (R_{disk}) 为 $127.39\text{ }\mu\text{m}$ 的微盘谐振腔的俯视图 SEM 照片; 图 3(b) 为它的侧视图. 图 4(a) 和图 4(b) 为一个由半径为 $31.24\text{ }\mu\text{m}$ 的微球压出的半径为 $50.76\text{ }\mu\text{m}$ 、厚度为 $15.03\text{ }\mu\text{m}$ 的微盘谐振腔 SEM 照片的俯视图和侧视图.

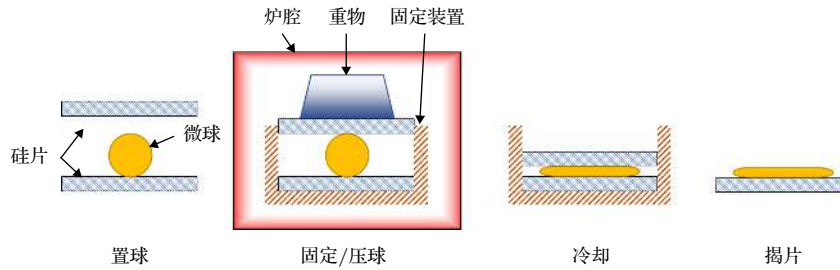


图 2 第二次加热示意图

Fig. 2. Schematic drawing of the second heating procedure.

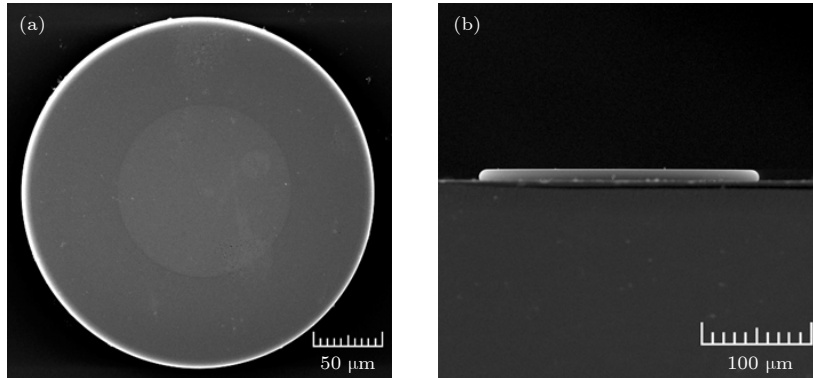


图 3 由一个直径为 101.56 μm 的微球压出的直径为 254.78 μm 的微盘谐振腔的 SEM 照片 (a) 俯视图; (b) 侧视图
Fig. 3. (a) Top-view and (b) side-view of a 254.78- μm -diameter microdisk fabricated with a 101.56- μm -diameter microsphere.

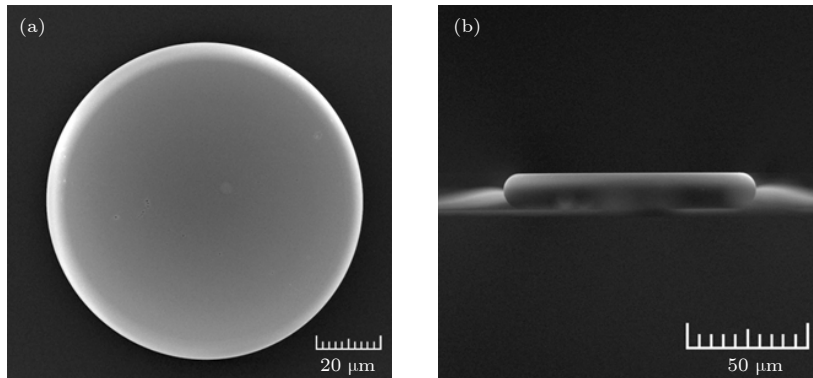


图 4 由一个直径为 62.48 μm 的微球压出的直径为 101.52 μm 的微盘谐振腔的 SEM 照片 (a) 俯视图; (b) 侧视图
Fig. 4. (a) Top-view and (b) side-view of a 101.52- μm -diameter microdisk fabricated with a 62.48- μm -diameter microsphere.

从图 3 和图 4 可见, 上述二次加热法制备的微盘俯视图呈标准圆形, 侧视图呈扁平型. 微盘侧壁光滑且为圆弧形, 与一般经过激光热回流处理的盘型或者环形谐振腔侧壁的形态特征一致 [15,16]. 微盘侧壁在第二次加热过程中并未与硅片有直接接触, 因此硅片不会影响微盘侧壁的质量. 微盘上表面较为平整, 但存在局部缺陷或杂质. 然而对于微盘型或者微环型回廊模谐振腔而言, 内部传输的光束主要通过侧壁/空气界面的全反射而被限制在谐振腔内. 微盘的上下表面并不参与到回廊模的形成中,

因此它们的质量并不是影响微盘品质因数的主要因素. 后续工作中可通过改进揭片的工艺流程来改善微盘上下表面的形貌质量.

3 回廊模与激光模式表征

将压制好的微盘取出与光纤锥进行抽运耦合实验. 微盘的抽运耦合实验与以往报道的其他形式的回廊模谐振腔的抽运耦合实验相类似 [19–21]. 使用一台 1520–1570 nm 波段可调谐激光器 (EXFO,

型号: FLS-2600) 和一台 808 nm 半导体激光器 (LEO, 型号: LE-LS-808) 分别作为无源和有源微盘谐振腔的抽运光源. 图 5(a) 给出了一个直径为 105.74 μm 的微盘和一根锥腰直径 (光纤锥最细处直径) 为 1.83 μm 的光纤锥近场耦合的显微镜图. 对于无源微盘, 主要观测谐振腔对各个波长光的谐振吸收情况, 测量吸收峰的宽度并计算出微盘在该谐振波长的 Q 值. 例如图 5(b) 展示了一个在 1551.0058 nm 处的谐振峰, 它的宽度为 2.5 pm, 从而可计算得出微盘在此谐振波长所体现的 Q 值为 6.2×10^5 .

在不同批次的微盘谐振腔中, 在碲酸盐基质玻璃中分别掺入了 Nd^{3+} 和 Tm^{3+} 离子作为有源掺杂

物质. 对于有源微盘谐振腔, 主要观测微盘受到抽运光激发产生的荧光是否可在谐振腔的模式选择作用下产生周期起伏的谐振峰以及是否可以在一定的抽运功率下将某一个回廊模式谐振峰转变成激光模式. 图 6(a) 为从一片 Nd^{3+} 掺杂的直径为 105.74 μm 、厚度为 10.4 μm 的微盘中以不同抽运功率 (图中不同颜色的曲线) 获取的输出光谱. 图中黑色短划线代表了块状基质玻璃中 Nd^{3+} 离子的 $^4\text{F}_{3/2} \rightarrow ^4\text{I}_{11/2}$ 自发辐射跃迁产生的荧光光谱. 从图 6(a) 可见, 对比于块状基质材料的光谱, 从微盘/光纤锥耦合系统中获取的输出光谱呈现出典型的周期分立的回廊模谐振结构, 且回廊模的高度随着抽运功率的提升而增高. 图 6(b) 展示了位于

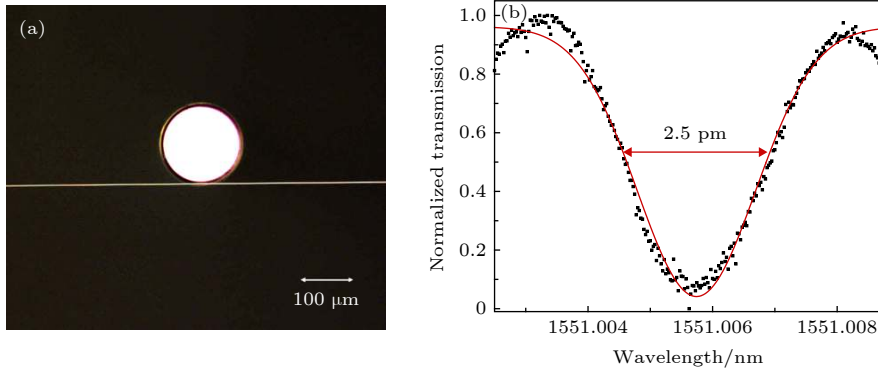


图 5 (a) 一颗直径为 105.74 μm 的微盘与一根锥腰直径为 1.83 μm 的光纤锥耦合图; (b) 在 1551.0058 nm 处获取的吸收峰 (Q 值为 6.2×10^5)

Fig. 5. (a) A 105.74- μm -diameter microdisk coupled with a 1.83- μm -waist-diameter fiber taper; (b) a typical absorption peak at 1551.0058 nm, representing a Q -factor of 6.2×10^5 .

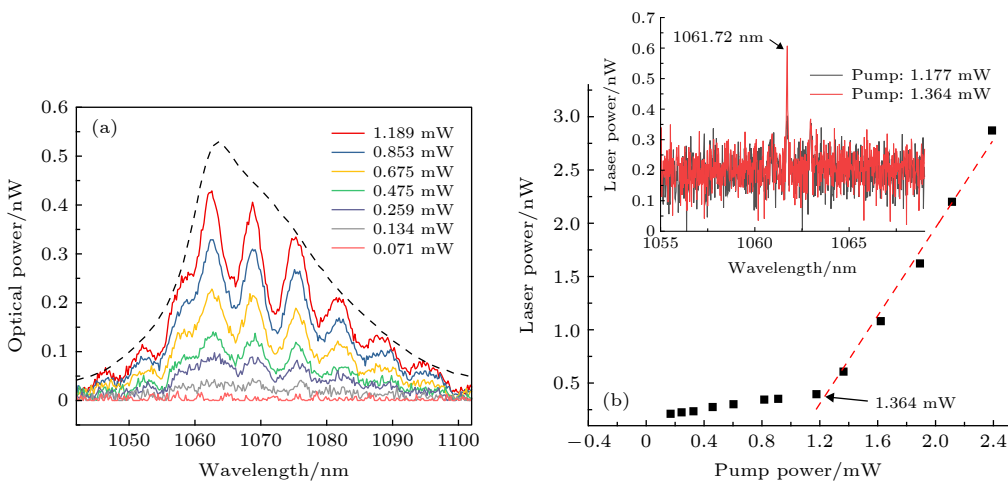


图 6 (a) 从一颗掺 Nd^{3+} 的有源微盘谐振腔中获取的不同抽运功率下的回廊模; (b) 微盘谐振腔的激光阈值现象 (内插图为微盘谐振腔在抽运阈值附近 (1.177 mW 和 1.364 mW) 出现的激光峰)

Fig. 6. (a) Whispering gallery mode patterns obtained with a Nd^{3+} -doped tellurite glass microdisk at different pump powers; (b) threshold behavior of the microdisk laser. Inset in panel (b) shows the transmission spectra of the coupling system at pump powers of 1.177 mW and 1.364 mW.

1061.72 nm 处谐振峰功率与抽运功率之间的关系. 从图 6(b) 可见, 当抽运光功率超过 1.364 mW 之后, 谐振峰功率和抽运峰功率之间的斜率关系有一个明显提升, 这是典型的激光阈值现象. 图 6(b) 的内插图为当抽运功率为 1.177 mW (黑色曲线) 和 1.364 mW (红色曲线) 时从耦合系统中获取的输出光谱. 可见当抽运功率从 1.177 mW 提升到 1.364 mW 后, 在 1061.72 nm 处的回廊模谐振峰转变成了一处激光峰.

类似地, 也选用 Tm^{3+} 离子作为掺杂材料制备了微盘谐振腔. Tm^{3+} 离子在 808 nm 抽运光 (LEO, 型号: LE-LS-808) 作用下的 ${}^3\text{F}_4\text{—}{}^3\text{H}_6$ 能级跃迁可形成 1.9 μm 附近的荧光, 因此在合适的谐振腔结构内可形成位于 1.9 μm 附近的激光模式. 图 7 展示了从一个 Tm^{3+} 离子掺杂微盘 (直径为 104.34 μm 、厚度为 15.86 μm) 测得的激光阈值现象. 图 7 内插图为此微盘在抽运光功率达到激光阈值附近 (1.306 mW) 时出现的位于 1908.63 nm 的激光峰.

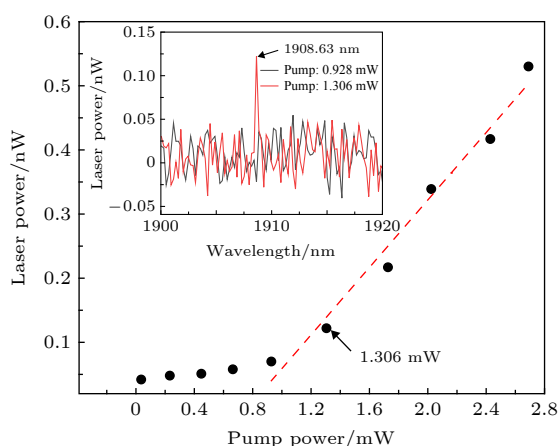


图 7 从一颗掺 Tm^{3+} 微盘 (直径为 104.34 μm , 厚度为 15.86 μm) 中测得的激光阈值现象 (内插图为此微盘谐振腔在抽运阈值 (0.928 mW 和 1.306 mW) 附近出现的位于 1908.63 nm 处的激光峰)

Fig. 7. Threshold behavior of a Tm^{3+} -doped microdisk laser (diameter: 104.34 μm , thickness: 15.86 μm). Inset: transmission spectra of the coupling system at pump powers of 0.928 mW and 1.306 mW.

4 结 论

介绍了一种简单便利的用于制备微盘谐振腔的热压法工艺. 这种工艺包括了两个加热步骤. 第一个加热步骤将基质玻璃从粉料的形态转变成为微球的形态; 第二个加热步骤将微球置于两个硬质

光滑的表面之间, 在外界加热加压的条件下将微球挤压成扁平的微盘形态. 选用碲酸盐玻璃作为基质材料, 制备出直径分布在 100—400 μm 之间, 厚度最小约为 8 μm , 典型 Q 值约为 10^5 的微盘谐振腔. 在基质玻璃材料中掺入 Nd^{3+} 或 Tm^{3+} 离子等有源掺杂物质, 即可制备出有源微球谐振腔. 将制备出的一颗直径为 105.74 μm , 厚度为 10.4 μm 的 Nd^{3+} 掺杂微盘与自制的光纤锥进行抽运耦合实验, 从耦合系统的输出光谱中可观测到周期分立的荧光回廊模式. 当抽运功率超过 1.364 mW 时, 可以从耦合系统的输出光谱中观测到明显的位于 1061.72 nm 附近的激光峰. 采用同样的工艺制备了一颗 Tm^{3+} 掺杂微盘 (直径为 104.36 μm , 厚度为 15.86 μm) 用于抽运耦合实验, 验证了当抽运功率达到 1.306 mW 时, 可以在 1.9 μm 附近获得明显的激光峰. 实验结果表明, 上述热压法工艺可用于处理碲酸盐玻璃等软化温度较低且不易于在多次加热过程中析晶的基质材料, 并将其制作成微盘结构用于低阈值激光器、生物化学传感等应用领域.

参考文献

- [1] Sandoghdar V, Treussart F, Hare J, Lefevre-Seguin V, Raimond J, Haroche S 1996 *Phys. Rev. A* **54** R1777
- [2] Murugan G S, Zervas M N, Panitchob Y, Wilkinson J S 2011 *Opt. Lett.* **36** 73
- [3] Huang Y T, Peng L X, Zhuang S J, Li Q L, Liao Y D, Xu C H, Duan Y F 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 244208 (in Chinese) [黄衍堂, 彭隆祥, 庄世坚, 李强龙, 廖廷佛, 许灿华, 段亚凡 2017 *物理学报* **66** 244208]
- [4] Gorajooi S B, Murugan G S, Zervas M N 2019 *Opt. Express* **27** 25493
- [5] Qian K, Tang J, Guo H, Zhang W, Liu J H, Liu J, Xue C Y, Zhang W D 2016 *Chin. Phys. B* **25** 114209
- [6] Vernooij D W, Ilchenko V S, Mabuchi H, Streed E W, Kimble H J 1998 *Opt. Lett.* **23** 247
- [7] Sasagawa K, Yonezawa Z, Iwai R, Ohta J, Nunoshita M 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 4325
- [8] Peng X, Song F, Jiang S, Peyghambarian N, Kuwata-Gonokami M, Xu L 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 1497
- [9] Elliott G R, Hewak D W, Murugan G S, Wilkinson J S 2007 *Opt. Express* **15** 17542
- [10] Li C, Dai S, Zhang Q, Shen X, Wang X, Zhang P, Lu L, Wu Y, Lv S 2015 *Chin. Phys. B* **24** 044208
- [11] Hu B, Wu Y H, Zheng Y L, Dai S X 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 064209 (in Chinese) [胡博, 吴越豪, 郑雨璐, 戴世勋 2019 *物理学报* **68** 064209]
- [12] Yang K, Dai S X, Wu Y H, Nie Q H 2018 *Chin. Phys. B* **27** 117701
- [13] Spillane S M, Kippenberg T J, Vahala K J, Goh K W, Wilcut E, Kimble H J 2005 *Phys. Rev. A* **71** 013817
- [14] Kippenberg T J, Spillane S M, Vahala K J 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 6113

- [15] Wang T J, He J Y, Lee C A, Niu H 2012 *Opt. Express* **20** 028119
- [16] Tulek A, Akbulut D, Bayindir M 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 203302
- [17] Polman A, Min B, Kalkman J, Kippenberg T J, Vahala K J 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 1037
- [18] Zou L X, Liu B W, Lv X M, Yang Y D, Xiao J L, Huang Y Z 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 191107
- [19] Yang Z, Wu Y, Yang K, Xu P, Zhang W, Dai S, Xu T 2017 *Opt. Mat.* **72** 524
- [20] Li A Z, Zhang J Q, Zhang M, Li W H, Wang S B, Lewis E, Brambilla G, Wang P F 2018 *Opt. Lett.* **43** 4325
- [21] Jiang S S, Guo C L, Che K J, Luo Z Q, Du T J, Fu H Y, Xu H Y, Cai Z P 2019 *Photon. Res.* **7** 566

Fabrication of tellurite glass microdisks with thermal pressing method*

Hu Bo¹⁾²⁾³⁾ Wu Yue-Hao^{1)2)3)†} Zheng Yu-Lu¹⁾²⁾³⁾ Dai Shi-Xun²⁾³⁾

1) (*Faculty of Electrical Engineering and Computer Science, Ningbo University, Ningbo 315211, China*)

2) (*Advanced Technology Research Institute, Laboratory of Infrared Materials and Devices, Ningbo University, Ningbo 315211, China*)

3) (*Key Laboratory of Photoelectric Materials and Devices of Zhejiang Province, Ningbo 315211, China*)

(Received 9 July 2019; revised manuscript received 29 September 2019)

Abstract

In this work, we report a two-step thermal pressing method of fabricating microdisk lasers that are suitable for processing thermally stable glass materials, and we utilize a tellurite glass ($\text{TeO}_2\text{-ZnO-Na}_2\text{O}$) to demonstrate the feasibility of this method. Compared with the conventional microdisk fabricating methods that rely on a series of complicated procedures, such as lithography, etching, thermal reflow, and ion implantation, this thermal pressing method involves only two heating procedures and can be accomplished with simple laboratory resistive heating furnaces. In the first heating procedure, we crush bulk tellurite glass into powders and drop those powders through a vertical heating furnace. Glass powders are transformed into microspheres by surface tension in the furnace. In the second heating procedure, microspheres are placed between two flat/smooth surfaces and are thermally treated when being pressed with suitable weights. With this procedure, the “flattened” microspheres turn into the microdisks. In this work, we demonstrate that our fabricated tellurite glass microdisks possess diameters of 100–400 μm , thinnest thickness of $\sim 8 \mu\text{m}$, and typical quality-factor (Q -factor) of $\sim 10^5$. We also dope tellurite glass with active dopants such as Nd^{3+} and Tm^{3+} to fabricate the active microdisk resonators. We couple those active microdisk resonators with fiber tapers and demonstrate that with appropriate pump power, apparent fluorescence whispering gallery mode and laser mode can be obtained. Taking a 105.74- μm -diameter, 10.4- μm -thickness, and Nd^{3+} -doped tellurite glass microdisk for example, we show that as the pump power increases above a threshold of 1.364 mW, a lasing peak near 1.06 μm can be obtained. We also show that lasing peaks near 1.9 μm can be obtained by coupling/pumping Tm^{3+} doped microdisks.

Keywords: thermal pressing, microdisk laser, whispering gallery mode, tellurite glass

PACS: 42.70.–a, 81.05.–t, 42.50.–p

DOI: 10.7498/aps.68.20191051

* Project supported by the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61605094), the Key Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61435009), and the K. C. Wong Magna Fund in Ningbo University, China.