

倍频双波长增透膜的研制

王明利 范正修

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海)

摘要: 本文从理论和实验上对倍频双波长增透膜进行了详细的研讨, 给出了膜系的设计和误差分析以及制备工艺, 解决了膜的均匀性、波带宽度问题。

Study of frequency doubling antireflection coating

Wang Mingli, Fan Zhenxiu

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

Abstract: The theoretical and experimental study on frequency doubling antireflection coating is reported in this paper. The study discusses the design of coating series, product process and error analysis, solves the problem of film uniformity and wavelength wide.

一、引言

随着激光技术的发展, 对光学薄膜提出了更高的要求, 倍频双波长增透膜就是其中之一。倍频双波长增透膜是指对 $0.53\mu\text{m}$ 和 $1.06\mu\text{m}$ 双波长的同时增透。

有关双波长增透膜的理论和制备技术已经有过一些报导^[1~4]。但是从实际出发, 双波长增透膜还存在着一些问题, 譬如说, 大基片的均匀性问题, 波带宽度问题。我们从理论和实验上进行了详细的研讨, 给出了膜系的设计和误差分析以及制备工艺, 并解决了大基片的均匀性问题和波带宽度问题。

二、理论根据

考虑多层介质增透系统的各个参数, 设膜厚分别为 d_1, d_2, d_3, \dots , 折射率分别为 n_1, n_2, n_3, \dots , 基底为 n_s (1.52), 入射介质为 n_0 (1)。

当光线垂直入射时, 系统的反射系数为:

$$r = \frac{(M_{11}n_0 - M_{22}n_s) + i(M_{12}n_0n_s - M_{21})}{(n_0M_{11} + M_{22}n_s) + i(M_{12}n_0n_s + M_{21})}$$

式中, $M_{11}, M_{12}, M_{21}, M_{22}$, 这些矩阵元素由下式给出:

$$\begin{pmatrix} M_{11} & iM_{12} \\ iM_{21} & M_{22} \end{pmatrix} = \prod_{j=1}^n \begin{pmatrix} \cos\varphi_j & i/n_j \sin\varphi_j \\ i n_j \sin\varphi_j & \cos\varphi_j \end{pmatrix}$$

$$\varphi_j = \frac{2\pi}{\lambda} n_j d_j$$

为了满足零反射的要求, 只需

$$n_0 M_{11} - n_s M_{22} = 0 \quad (1)$$

$$n_0 n_s M_{12} - M_{21} = 0 \quad (2)$$

我们采用等厚度的多层膜系，因为它在位相 φ 的波长处满足零反射的同时，在位相 $\pi - \varphi$ 处也能满足零反射，所以只需要考虑一个波长点。

$$\begin{cases} \varphi = \frac{2\pi}{\lambda_1} nd \\ \pi - \varphi = \frac{2\pi}{\lambda_2} nd \end{cases}$$

$$\lambda_2 / \lambda_1 = 1/2$$

$$\varphi = \pi/3 \quad (3)$$

得

假设使用二层膜系，联立(1)，(2)，(3)式得：

$$\begin{cases} n_1 = 0.88 \\ n_2 = 1.75 \end{cases}$$

$n_1 = 0.88$ 的材料实际上是不存在的，为了便于实现折射率的选择，我们使用三层膜系。联立(1)，(2)，(3)式并设 $n_1 = 1.46$ ， 1.46 的材料为 SiO_2 ，得

$$\begin{cases} n_1 = 1.46 \\ n_2 = 1.67 \\ n_3 = 1.92 \\ nd = 1767 \text{ \AA} \end{cases}$$

根据上面所得的结果，分别采用 SiO_2 ， Al_2O_3 ， ZrO_2 三种材料与之匹配，采用极值法控制， $\lambda_{\text{控}} = 7068 \text{ \AA}$ 。

三、误差分析

对于多层膜的制备，除了选择适当的材料和蒸发工艺以保证膜层厚度的均匀性以外，主要的问题是每一膜层厚度的精确监控，如果控制的误差太大，要制备一个预定的薄膜系统是不可能的，控制误差应该保证在允许的偏差范围以内。

我们的控制方法是采用极值法控制。假定在控制四分之一波长时，反射率为一个 ΔR 的误差，对应的相位 φ 的相位误差为 φ_A ，采用过正控制，即 $\varphi_1 = \pi/2 + \varphi_A$ 。

光线垂直入射时，膜层（折射率为 n_A ）和基底（为 n_s ）的特征矩阵为：

$$\begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\varphi_1 & i/n_A \sin\varphi_1 \\ in_A \sin\varphi_1 & \cos\varphi_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ n_s \end{pmatrix}$$

由于 $\cos\varphi_1 = -\sin\varphi_A$ ， $\sin\varphi_1 = \cos\varphi_A$ ，组合导纳为：

$$Y = \frac{C}{B} = \frac{in_A \cos\varphi_A - n_s \sin\varphi_A}{-\sin\varphi_A + in_s/n_A \cos\varphi_A}$$

$$\text{令：} \sin\varphi_A \approx \varphi_A, \quad \cos\varphi_A \approx 1 - \varphi_A^2/2$$

$$\text{则有: } Y = \frac{in_A(1 - \frac{1}{2}\varphi_A^2) - n_s\varphi_A}{-\varphi_A + i\frac{n_s}{n_A}(1 - \frac{1}{2}\varphi_A^2)}$$

在真空中控制的反射率为:

$$R + \Delta R = r \cdot r^*$$

$$r = \frac{(n_s - 1)\varphi_A + i\left(\frac{n_s}{n_A} - n_A\right)\left(1 - \frac{\varphi_A^2}{2}\right)}{-(1 + n_s)\varphi_A + i\left(\frac{n_s}{n_A} + n_A\right)\left(1 - \frac{\varphi_A^2}{2}\right)}$$

则

$$R + \Delta R = \frac{(n_s - 1)^2\varphi_A^2 + \left(\frac{n_s}{n_A} - n_A\right)^2\left(1 - \frac{\varphi_A^2}{2}\right)^2}{(n_s + 1)^2\varphi_A^2 + \left(\frac{n_s}{n_A} + n_A\right)^2\left(1 - \frac{\varphi_A^2}{2}\right)^2} \\ = \left(\frac{n_s/n_A - n_A}{n_s/n_A + n_A}\right)^2 \left[1 + \frac{(n_s^2 + 1 - n_A^2 - \frac{n_s^2}{n_A^2})4n_s}{(n_s^2/n_A^2 - n_A^2)^2}\varphi_A^2 \right] \quad (4)$$

由于没有误差时

$$R = \left(\frac{n_s/n_A - n_A}{n_s/n_A + n_A}\right)^2 \quad (5)$$

比较(4), (5)式得

$$\Delta R = \frac{(n_s^2 + 1 - n_A^2 - \frac{n_s^2}{n_A^2})4n_s}{(n_s^2/n_A^2 - n_A^2)^2}\varphi_A^2 \quad (6)$$

这里得到的 ΔR 的表达式与文献[5]中H. A. Madeod报道的

$$\Delta R = \frac{4n_s(n_A^2 - 1)\left(1 - \frac{n_s^2}{n_A^2}\right)}{(1 + n_s)^4}\varphi_A^2$$

有不同之处。这是由于Madeod在推导 ΔR 表达式没有考虑到薄膜本身(没有误差时)的位相厚度, 只考虑到误差的位相厚度。

$$\text{令: } M = \frac{(n_s^2 + 1 - n_A^2 - \frac{n_s^2}{n_A^2})4n_s}{(n_s^2/n_A^2 - n_A^2)^2}$$

$$\text{所以 } \varphi_A = \sqrt{\frac{\Delta R}{M}} \quad (7)$$

由于第一层的反射率 ΔR 的误差, 导致了相位厚度误差 φ_A , 从而也使第二层引入了相位厚度误差 φ_B , 如图1所示。考虑到无吸收膜的导纳轨迹是导纳复平面上的一个按顺时针方向追迹而成的圆。

由图1可见, A层的相位厚度为 $\pi/2 + \varphi_A$, 由于误差 φ_B 的存在, 膜层B与实轴的交点由 n 变到 $n + \Delta n$,

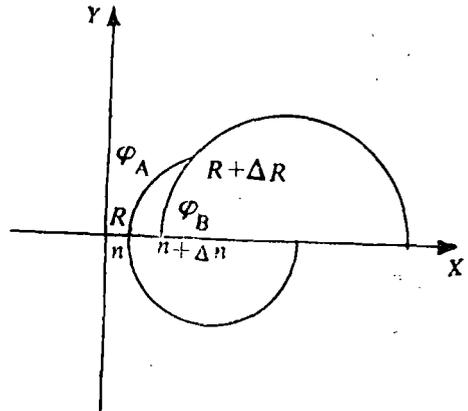


图1 A, B膜层的相位厚度误差

$$\begin{pmatrix} B \\ C \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\varphi_B & \frac{i}{n_B} \sin\varphi_B \\ in_B \sin\varphi_B & \cos\varphi_B \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{\pi}{2} + \varphi_A\right) & \frac{i}{n_A} \sin\left(\frac{\pi}{2} + \varphi_A\right) \\ in_A \sin\left(\frac{\pi}{2} + \varphi_A\right) & \cos\left(\frac{\pi}{2} + \varphi_A\right) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 1 \\ n_S \end{pmatrix}$$

组合导纳: $Y = \frac{C}{B}$, 为了求出 $n + \Delta n$, 使 $Y = \frac{C}{B}$ 的虚部为零, 略去 φ_A 、 φ_B 的高次项得

$$\varphi_B = -\frac{n_A - n_S^2/n_A}{n_A^2/n_B - n_B \cdot n_S^2/n_A^2} \varphi_A \quad (8)$$

这里推出的结果与文献[5]中 H. A. Macleod 推导的

$$\varphi_B = -\frac{n_A - n_S^2/n_A}{n_B - n_S^2/n_B} \varphi_A$$

也有不同之处, 同样是由于 Macleod 忽视了第一层膜 (即 A 层膜) 本身位相厚度。

$$\text{令: } N = -\frac{n_A - n_S^2/n_A}{n_A^2/n_B - n_B \cdot n_S^2/n_A^2} \quad (9)$$

式中, φ_A 、 φ_B 的符号相反。如果第一层为正误差, 那么, 第一层的过正恰好用第二层的不足 φ_B 补偿, 同样第二层在蒸发过程中存在控制误差 ΔR_B , 这样第二层膜的全部误差应该包括

两部分, 即 $N_1 \varphi_A + \sqrt{\frac{\Delta R_B}{|M_2|}}$ 。

同理, 我们可以得到第三层的误差 $N_2 \varphi_B + \sqrt{\frac{\Delta R_C}{|M_3|}}$, 其中 N_1, N_2, M_2, M_3 分别在等效膜层的基础上获得。

实际监控时反射率控制误差一般由两项构成, 即转值点处过头误差 α 和信号随机误差 β , 通常情况下 α 和 β 近似正态分布, 在允许范围内, 给定每层膜的反射率控制误差的过头误差 α 和随机误差 β , 然后由计算机产生两个 (0, 1) 分布的正态函数 P_1, P_2 , 反射率误差可以表示为: $\Delta R = P_1 \alpha + P_2 \beta$ 。假定 α 为 1.0%, β 为 0.5%^[6, 10],

由以上的推导, 可得第一层的误差:

$$\varphi_A = 0.1036, \quad P_{R1} = \frac{\varphi_A}{\pi/2} = 6.6\%$$

第二层的误差:

$$\varphi_B = -0.0509, \quad R_{R2} = \frac{\varphi_B}{\pi/2} = -3\%$$

第三层的误差:

$$\varphi_C = 0.1708, \quad P_{R3} = \frac{\varphi_C}{\pi/2} = 10.8\%$$

在三层膜厚分别存在 6.6%, -3%, 10.8% 的误差时, 三层膜厚分别为:

$$n_1 = 1.92, \quad 1883 \text{ \AA};$$

$$n_2 = 1.67, \quad 1714 \text{ \AA};$$

$$n_3 = 1.46, \quad 1957 \text{ \AA};$$

用以上三个膜厚的数据输入计算机, 得如下结果:

0.53 μm 处, $R=0.0008$;
1.06 μm 处, $R=0.0005$ 。

计算机的程序由上海光机所提供, 以上结果表明, 用极值法控制误差在允许范围内。

四、制备工艺

1. ZrO_2 膜料的特征

ZrO_2 材料是1200 $^\circ\text{C}$ 高温炉烧结2h的块料, 用E型电子枪蒸发。 ZrO_2 膜的折射率的大小与基体温度及真空度和沉积速率有很大的依赖性, 这样给淀积带来极大的困难, 所以固定蒸发条件是极重要的问题, 而蒸发条件的基体温度和真空度都是可以保持不变的。这样, 问题的关键就是它的蒸发速率了, 蒸发速率的控制取决于操作人员的熟练程度和工艺水准, 蒸发速率既不能太快, 也不能太慢, 太快容易形成大颗粒结晶, 使薄膜表面变得很粗糙, 太慢折射率不能达到要求, 而且会影响薄膜的致密性。

表1是在不同的蒸发速率下, ZrO_2 折射率的实验结果, 基底的温度为180 $^\circ\text{C}$, 真空度为 $1.5 \times 10^{-2}\text{Pa}$ 以上的数据是多次实验的平均值, 是对 $\lambda/4$ 单层膜 ($\lambda=1.06\mu\text{m}$)

表1 折射率 n 与蒸发速率 v 的关系

$v(\text{\AA}/\text{s})$	5	8	10	12	15	40
n	1.821	1.880	1.915	1.925	1.927	2.010

而言, 在空气中测得, 由以上的数据表明, ZrO_2 材料的折射率在一定的温度和气压下, 蒸发速率对它的折射率的影响很大, 一般来说, 以12 $\text{\AA}/\text{s}$ 的速率蒸发是比较适合的。

2. Al_2O_3 膜料的特性

Al_2O_3 材料是透明的晶体, 它的折射率与蒸发条件也有很大的关系, 在真空不好和基体温度低的条件下折射率可能小于1.52, 在真空好基体温度高蒸发速率快的条件下可达到1.70, 表2是不同蒸发速率下, Al_2O_3 的折射率, 基体温度同样为180 $^\circ\text{C}$, 真空度为 $1.5 \times 10^{-2}\text{Pa}$ 。

表2 折射率 n 与蒸发速率 v 的关系

$v(\text{\AA}/\text{s})$	5	8	10	12	15	18
n	1.551	1.557	1.561	1.612	1.631	1.654

3. SiO_2 膜料的特性

大量的实验证明, SiO_2 膜料在空气中的折射率的再现性比较好, 蒸发速率比较快^[7], 一般为40 $\text{\AA}/\text{s}$ 。由于这些特点, 要求在蒸发 SiO_2 时特别注意精度控制。

五、实验

在实验过程中, 我们发现一些问题。一是0.53 μm 处的波带比较窄, 这给制备工作带来困难。二是大基片均匀性比较差, 有时基片的直径大到 $\phi 300\text{mm}$, 大基片均匀性除与镀膜机的几何参数有关以外, 还与大基片的不同位置的表面状态, 基体温度不一致而使得底层膜的厚度不能得到一致的精确控制有关。

为了解决以上的问题, 在底层加镀一层 $\lambda/2$ (1.06 μm) 的低折射率膜层, 即 SiO_2 膜层, 这样可以加宽0.53 μm 处的波带, 提高膜片的均匀性^[11], 薄膜的非均匀性由未加底层的 $\pm 1\%$ 以上提高到小于 $\pm 0.5\%$, 膜厚均匀性得到很大的改进。

底层膜的厚度为 $\lambda/2$ (1.06 μm 正好为0.53 μm 处的一个波长, 同时正好是控制波长的 $3/4$

倍), 极值法控制走三个来回。

图2是加镀SiO₂底层与不加镀SiO₂底层的理论曲线。从图2的曲线可以看出加底层后0.53μm处和1.06μm处的波带宽度都加宽了, 给制备工作提供了方便, 同时有实验表明SiO₂膜的激光损伤阈值对厚度的依赖关系基本上没有膜厚效应^[9], 还有实验表明在加镀SiO₂的底层的增透膜可以提高薄膜的激光损伤阈值^[8,9]。

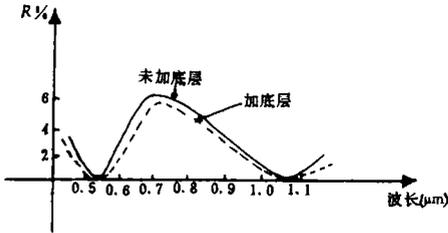


图2 加镀与不加镀SiO₂的理论曲线

表3 实验结果

	R	
	0.53(μm)	1.06(μm)
1	1‰	1‰
2	1.5‰	1.5‰
3	0.5‰	1‰
4	1‰	2‰
5	1‰	0.5‰

表3是最后的实验结果。从结果看, 实验结果和理论数值是吻合的, 值得注意之处是Al₂O₃的折射率比理论设计的折射率要低, 所以在镀Al₂O₃时应尽量增大其折射率。

对给本工作提出宝贵意见的李庆国、范瑞英、吴周令同志表示感谢。

参 考 文 献

- [1] Mouchat J. Appl Opt, 1977; 16 (9) : 2486
- [2] Mouchat J. Appl Opt, 1977; 16 (11) : 3001
- [3] Nagendra C. Appl Opt, 1988; 27 (11) : 2320
- [4] 李庆国. 中国激光, 1984; 11 (2) : 114
- [5] Macleod H A. Opt Acta, 1972; 19 (1) : 1~28
- [6] 唐晋发. 薄膜光学. 上海: 上海科学技术出版社, 1984
- [7] 范瑞英. LF12研制工作报告, 1987
- [8] 范正修. 中国激光. 1982; 9 (9) : 582
- [9] 吴周令. 博士论文. 上海光机所, 1988; 91
- [10] 李 莉. 博士论文. 上海技物所, 1987; 31
- [11] 谭暑生. 光学学报, 1984; 4 (4) : 355

*

*

*

作者简介: 王明利, 男, 1965年5月出生。助工。现从事光学薄膜的研究工作。

收稿日期: 1991年6月10日。 收到修改稿日期: 1991年8月13日。