

文章编号: 1000-5013(2011)04-0385-04

# 纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜对 1 342 nm 激光的被动调 Q

王燕飞, 王加贤, 张培, 杨先才

(华侨大学 信息科学与工程学院, 福建 泉州 362021)

**摘要:** 采用射频磁控溅射技术和热退火处理方法制备纳米锗镶嵌二氧化硅(Ge-SiO<sub>2</sub>)薄膜. 利用光吸收谱和 X 射线衍射谱对薄膜材料进行表征, 得到薄膜的光学带隙为 1.12 eV, 纳米 Ge 晶粒的平均尺寸约为 16.4 nm. 将纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜作为可饱和吸收体插入激光二极管泵浦的平-凹腔 Nd:YVO<sub>4</sub> 激光器内, 实现 1 342 nm 激光的被动调 Q 运转, 获得脉冲宽度约为 40 ns, 重复频率为 33.3 kHz 的调 Q 脉冲序列输出. 根据实验现象并结合薄膜结构, 认为纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜的界面态和缺陷态是产生调 Q 的主要原因.

**关键词:** 激光技术; Nd:YVO<sub>4</sub> 激光器; 纳米锗镶嵌二氧化硅薄膜; 被动调 Q; 可饱和吸收体

**中图分类号:** O 436

**文献标志码:** A

激光二极管(LD)泵浦的全固态激光器的转换效率高、结构紧凑、使用寿命长、光束质量好、性能稳定, 特别是调 Q 方式运转, 具有脉冲宽度窄、峰值功率大、重复频率高等优点. 由于半导体材料的能带间隙和能级寿命可利用金属有机化学气相淀积和分子束外延生长技术, 通过控制生长条件和生长环境加以调节, 使其吸收光谱能覆盖从可见光到远红外整个区域. 因此, 从理论上讲几乎所有的固体激光器可以选择适当的半导体单晶或半导体化合物材料来实现调 Q 运转<sup>[1]</sup>. Lai 等<sup>[2]</sup>采用 InAs/GaAs 作为可饱和吸收体, 对 LD 泵浦的 Nd:YVO<sub>4</sub> 的 1 342 nm 激光被动调 Q, 在 2.2 W 的泵浦功率下获得平均功率 360 mW, 脉冲宽度 90 ns 的调 Q 脉冲. Li 等<sup>[3]</sup>采用 InGaAsP 作为可饱和吸收体, 对 LD 泵浦的 Nd:YVO<sub>4</sub> 的 1 342 nm 激光被动调 Q, 在 1.8 W 的泵浦功率下获得平均功率 160 mW, 脉冲宽度 19 ns 的调 Q 脉冲. Huang 等<sup>[4]</sup>采用 Co<sup>2+</sup>:LaMgAl<sub>11</sub>O<sub>19</sub> 作为可饱和吸收体, 对 LD 泵浦的 Nd:YVO<sub>4</sub> 的 1 342 nm 激光被动调 Q, 在 11.7 W 的泵浦功率下获得平均功率 580 mW, 脉冲宽度 42 ns 的调 Q 脉冲. 本文在研究纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜的发光与非线性光学特性时发现, 把硅衬底的纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜插入 Nd:YVO<sub>4</sub> 激光器中, 可以实现 1 342 nm 激光的被动调 Q.

## 1 实验部分

### 1.1 纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜的制备

采用射频磁控反应溅射法制备纳米锗镶嵌二氧化硅(Ge-SiO<sub>2</sub>)薄膜. 作为溅射气体的高纯度氩气经质量流量计精确控制通入磁控室, 溅射靶材为高纯度的单晶 Ge 和 SiO<sub>2</sub>. 选取硅片作为衬底, 经过常规清洗后放入磁控室. 制备薄膜的主要参数: 射频功率为 250 W, 工作气压为 1.0 Pa, 氩气气体流量为 80 mL·min<sup>-1</sup>, 衬底加热温度为 300 ℃, 沉积时间为 30 min, 膜厚监测仪显示薄膜厚度约为 105 nm.

薄膜生成后置于退火炉里, 在氮气保护下经过 1 000 ℃连续 1 h 的退火处理. 采用德国 Bruker 公司 D8 Advance 型 X 射线衍射仪对薄膜进行 XRD 分析, 采用美国 Unico 公司的 UV-2800H 型紫外可见分光光度计对样品进行光吸收测量, 所有测试均在室温下进行.

### 1.2 纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜的 XRD 分析

对纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜进行 X 射线衍射(XRD)分析, 结果如图 1 所示. 由图 1 可见, 样品有 4 个晶态

收稿日期: 2010-07-23

通信作者: 王加贤(1955-), 男, 教授, 主要从事固体激光技术与超短光脉冲的研究. E-mail: wangjx@hqu.edu.cn.

基金项目: 国家自然科学基金重点基金资助项目(60838003); 福建省自然科学基金资助项目(2009J01291)

衍射峰,其 $2\theta$ 角分别为 $27.6^\circ$ , $45.7^\circ$ , $53.5^\circ$ 和 $28.4^\circ$ ,分别对应 Ge 的(111),(220),(311)和 Si 的(111)面的衍射,这说明在产生纳米 Ge 晶粒的同时也形成了 Si 晶粒. 把 X 射线波长 $\lambda=0.154\text{ nm}$ , $2\theta=27.6^\circ$ ,衍射峰的半峰全宽 $\beta=0.0087\text{ rad}$ 代入 Scherrer 式<sup>[5]</sup>,可得到纳米锗晶粒的平均尺寸为 $16.4\text{ nm}$ .

1.3 纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜的光吸收测试

测量纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜在 $190\sim1100\text{ nm}$ 波长范围内的光吸收谱,测量时在比较光束中加入一空白基片以消除基片吸收的影响,从而得到样品的光吸收图谱. 由此谱图逐点取值计算,描绘 $(\alpha h\nu)^{1/2}\sim h\nu$ 关系曲线(Tauc 曲线),如图 2 所示. 根据 Tauc 式<sup>[6-7]</sup>,可确定样品的光学带隙 $E_{\text{opt}}$ 为 $1.12\text{ eV}$ .

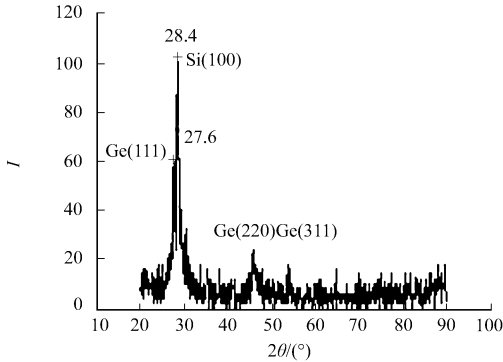


图 1 样品的 X 射线衍射谱  
Fig. 1 XRD spectrum of the samples

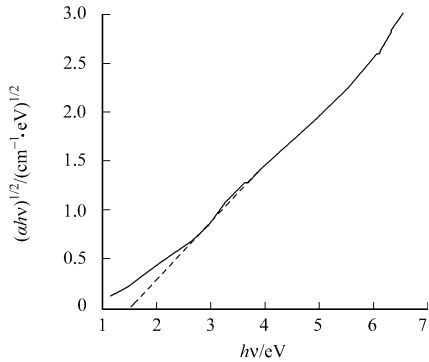


图 2 样品的 Tauc 曲线  
Fig. 2 Tauc curves of the samples

1.4 被动调 Q 实验

纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜被动调 Q 的 Nd:YVO<sub>4</sub> 激光器实验装置如图 3 所示. LD 为光纤耦合 $808\text{ nm}$ 半导体激光器,最大输出功率 $16\text{ W}$ ,输出耦合光纤的芯径 $600\text{ }\mu\text{m}$ ,数值孔径 $NA$ 为 $0.22$ .泵浦激光经过准直和聚焦透镜后耦合效率约为 $90\%$ .用恒温水循环装置对 LD 进行温度控制,可有效保证 LD 发射中心波长与 Nd:YVO<sub>4</sub> 的吸收峰匹配.

输入镜 $M_1$ 为凹面镜,其曲率半径为 $100\text{ cm}$ ,镀上 $1342\text{ nm}$ 的高反膜和 $808\text{ nm}$ 的高透膜;Nd:YVO<sub>4</sub>晶体 $a$ 轴切割,尺寸为 $4\text{ mm}\times4\text{ mm}\times8\text{ mm}$ ,Nd 离子掺杂质量浓度为 $0.5\%$ ,两通光面镀上 $808$ 和 $1342\text{ nm}$ 高透膜,晶体到腔镜 $M_1$ 的距离为 $1\text{ cm}$ .Nd:YVO<sub>4</sub>晶体用铝箔包紧并用微通道热沉通水冷却.输出镜 $M_2$ 为平面镜,对 $1342\text{ nm}$ 的光透过率为 $8\%$ .纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜贴在带孔的热沉板上置于激光器腔内靠近平面输出镜处.

输出激光由响应时间 $1\text{ ns}$ 的光电二极管接收并输入到 $300\text{ MHz}$ 存储示波器上存储和观察脉冲波形;激光器输出功率用美国 Molelectron Detector 公司的功率计测量(精度为 $1\text{ mW}$ ).

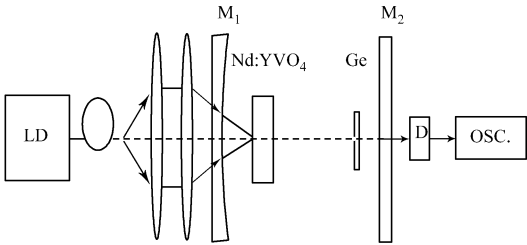
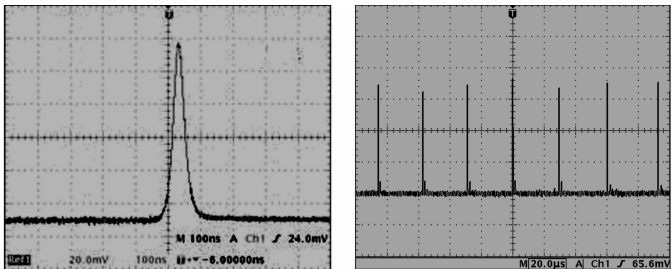


图 3 LD 泵浦的被动调 Q  
Nd:YVO<sub>4</sub> 激光器实验装置  
Fig. 3 Experimental setup of the LD pumped  
passively Q-switched Nd:YVO<sub>4</sub> laser

2 实验结果与分析

把退火温度为 $1000\text{ }^\circ\text{C}$ 的纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜插入谐振腔中靠近平面输出镜处,激光器的阈值泵浦功率为 $9\text{ W}$ .当泵浦功率为 $14\text{ W}$ ,腔长 $L$ 为 $3\text{ cm}$ 时,激光器输出高重复频率的调 Q 脉冲.脉冲序列和展开后的单脉冲波形,如图 4 所示.

由图 4(a),(b)可知,脉冲的时间宽度和脉冲间隔时间分别为 $40,30\text{ }\mu\text{s}$ ,即脉冲



(a) 单脉冲波形 (b) 调 Q 脉冲序列

图 4 脉冲波形

Fig. 4 Single pulse shape and passive Q-switching pulse train

的重复频率为 33.3 kHz. 实验测得调 Q 脉冲的平均功率为 54 mW, 可以求得单个脉冲的能量为 1.62 μJ, 脉冲峰值功率为 40.5 W.

在泵浦功率为 14 W 时, 调 Q 激光输出功率和脉冲宽度与腔长的关系, 如图 5 所示. 由图 5 可知, 当腔长增加时, 调 Q 脉冲变宽. 这是因为腔长增加时, 腔内光子寿命增加, 脉冲宽度正比于光子寿命, 所以脉冲变宽.

谐振腔内激光光束分布<sup>[8]</sup>为

$$\omega(z) = \omega_0 \sqrt{1 + (z/f)^2}, \tag{1}$$

$$\omega_0 = \sqrt{f\lambda/\pi}, \tag{2}$$

$$f^2 = \frac{L(R_1 - L)(R_2 - L)(R_1 + R_2 - L)}{[(L - R_1) + (L - R_2)]^2}. \tag{3}$$

式(1)~(3)中:  $L$  为腔长;  $z$  为晶体中心位置与平面镜的距离;  $\lambda$  为 1 342 nm 激光波长; 对于平-凹腔,  $R_1$  为凹面镜曲率半径,  $R_2$  趋于无穷大;  $f$  为等效共焦腔焦距;  $\omega(z)$  为晶体中心处的激光光束半径;  $\omega_0$  为激光光束的基模腰斑半径.

把相关参数代入式(1)~(3)进行计算, 可以得出随着腔长  $L$  的增加, 激光光束半径  $\omega(z)$  增大. 所以当腔长增加时, 激光晶体 1 342 nm 激光光斑变得更大, 增大部分的激光不会产生受激辐射, 反而会导致损耗增加, 故输出功率减小.

### 3 讨论

与体材料相比, 由于纳米材料的尺寸很小, 电子在其中的运动受到了极大的限制, 体现出较强的量子限制效应. 郭亨群等<sup>[5]</sup>采用纳米 Si 镶嵌 SiO<sub>2</sub> 薄膜对闪光灯泵浦的 Nd:YAG 的 1 064 nm 激光被动调 Q, 并认为纳米 Si 镶嵌 SiO<sub>2</sub> 薄膜中存在大量的界面态和缺陷态, 在 1 064 nm 附近有次带吸收峰, 可以应用于 Nd:YAG 激光器的被动调 Q. 吕蓬等<sup>[9]</sup>采用 nc-Si/SiN<sub>x</sub> 薄膜对 Nd:YVO<sub>4</sub> 的 1 064 nm 激光调 Q, 并认为硅片的自聚焦效应和 nc-Si/SiN<sub>x</sub> 薄膜的双光子饱和吸收是被动调 Q 的主要原因.

实验测得样品的光学带隙为 1.12 eV, 在 1 342 nm 激光(光子能量约 0.924 eV)的激发下不能产生带间的单光子跃迁. 但是, 通过高温热处理具有一定氧浓度的直拉单晶硅, 由于氧沉淀的生成, 导致大量自间隙硅原子被发射到硅基体中, 形成高密度的位错环等缺陷. 由于硅晶体中位错缺陷可能在硅的禁带中引入深能级<sup>[10]</sup>, 因而可使载流子直接跃迁到缺陷能级, 从而避开声子的作用. 一般认为这些缺陷的荧光光谱在 0.8~1.0 eV 范围内.

镶嵌在 SiO<sub>2</sub> 基质中的纳米 Ge 有着相当大的表面-体积比, 由于晶相不同, 纳米 Ge 与介质之间形成较陡的界面, 界面原子排列和键的组态有较大的无规则性, 故而存在有大量的界面态. 当激光照射 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜时, 纳米 Ge 吸收光并产生光生载流子, 而载流子在纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜中的界面态和缺陷态上积累. Colace 等<sup>[11]</sup>研究表明, 载流子在 Ge 缺陷态能级上的寿命约为 40 ns. 当入射光光强较大时, 价带中的电子可以吸收光子跃迁到缺陷态, 同时在价带和缺陷态中产生大量的光生载流子. 当载流子大量积累时, 薄膜就被“漂白”而变得透明. 然后, 缺陷态量子化能级上的载流子再跃迁回基态.

纳米 Ge 吸收激光产生的光生载流子在缺陷态上获得积累, 并最终导致缺陷态量子化能级上的积累直至饱和. 随着缺陷能级的大量被占据, 薄膜对于 1 342 nm 的光吸收变小甚至消失, 透射激光形成调 Q 脉冲波形. 因此, 认为界面态和缺陷态引起的吸收作用是纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜实现 1 342 nm 激光被动调 Q 运转的主要原因.

通过实验可以得出 1 000 °C 退火的薄膜调 Q 现象最为明显, 而相同实验条件且退火温度在 1 000 °C 以下的薄膜调 Q 现象不明显. 孙成伟等<sup>[12]</sup>研究表明, 退火温度可改变薄膜中缺陷种类及浓度改变材料的光学特性, 缺陷浓度与退火温度  $T_p$  成正比, 温度越高, 缺陷浓度越大. 不同退火温度下薄膜的缺陷态浓度不同, 所以调 Q 效果也有所不同.

利用纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜进行调 Q 实验, 不仅是作为可饱和吸收体的一种应用, 而且对其非线性光

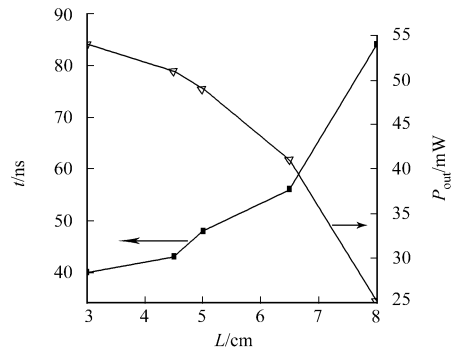


图 5 脉冲宽度和输出功率与腔长的关系  
Fig. 5 Pulse duration and output power versus cavity length

学特性的一种验证. 采用纳米 Ge-SiO<sub>2</sub> 薄膜实现 1 342 nm 激光的被动调 Q 是一种新的尝试,在这基础上,有可能实现 1 064 和 1 342 nm 激光的双波长调 Q.

参考文献:

[1] TSOU Y,GARMIRE E,CHEN W,et al. Passive-Q-switching of Nd : YAG lasers by use of bulk semiconductors [J]. Opt Lett,1993,18(18):1514-1516.

[2] LAI Hong-chang,Li An,SU Kuan-wei,et al. InAs/GaAs quantum-dot saturable absorbers for diode-pumped passively Q-switched Nd-doped 1.3-μm lasers[J]. Opt Lett,2005,30(5):480-482.

[3] LI An,LIU Sai-chang,SU Kuan-wei,et al. InGaAsP quantum-wells saturable absorber for diode-pumped passively Q-switched 1.3 μm lasers[J]. Appl Phys:B,2006,84(3):429-431.

[4] HUANG Hai-tao,HE Jing-liang,ZUO Chun-hua,et al. Co<sup>2+</sup>:LMA crystal as saturable absorber for a diode-pumped passively Q-switched Nd : YVO<sub>4</sub> laser at 1 342 nm[J]. Appl Phys (B),2007,89(2/3):319-321.

[5] 郭亨群,林赏心,王启明. 纳米 Si 镶嵌 SiO<sub>2</sub> 薄膜的发光与非线性光学特性的应用[J]. 半导体学报,2006,27(2):345-349.

[6] 于威,张立,王保柱,等. 氢化纳米硅薄膜中氢的键合特征及其能带结构分析[J]. 物理学报,2006,55(4):1936-1941.

[7] 宋超,陈谷然,徐骏,等. 不同退火温度下晶化硅薄膜的电学输运性质[J]. 物理学报,2009,58(11):7878-7883.

[8] 周炳琨,高以智,陈倜嵘,等. 激光原理[M]. 5 版. 北京:国防工业出版社,2007:64-66.

[9] 吕蓬,郭亨群,王加贤,等. 纳米 Si/SiN<sub>x</sub> 薄膜的制备及对 Nd : YAG 激光器的被动调 Q[J]. 激光技术,2008,32(2):163-166.

[10] 袁志钟,杨德仁. 硅晶体缺陷发光及应用[J]. 材料导报,2005,19(1):82-85.

[11] COLACE L,MASINI G,ASSANTO G,et al. Efficient high-speed near-infrared Ge photodetectors integrated on Si substrates[J]. Applied Physics Letters,2000,76(10):1231-1233.

[12] 孙成伟,刘志文,张庆瑜. 退火温度对 ZnO 薄膜结构和发光特性的影响[J]. 物理学报,2006,55(1):430-436.

Passive Q-Switching for 1 342 nm Laser with Nc-Ge/SiO<sub>2</sub> Films

WANG Yan-fei, WANG Jia-xian,  
ZHANG Pei, YANG Xian-cai

(College of Information Science and Engineering, Huaqiao University, Quanzhou 362021, China)

**Abstract:** NC-Ge/SiO<sub>2</sub> films are prepared by radio-frequency (RF) magnetron sputtering technique and thermal annealing. The films have been characterized by optical absorption spectra and X-ray diffraction. The optical band gap of samples is 1.12 eV, the average size of nanocrystalline germanium in the films is about 16.4 nm. The passive Q-switched operation of a laser diode pumped Nd : YVO<sub>4</sub> 1 342 nm laser was achieved by inserting the nc-Ge/SiO<sub>2</sub> films as the saturable absorber into the plane-concave resonator. The pulse train with average pulse duration of 40 ns, repetition rate of 33.3 kHz was obtained. With the experimental phenomenon and the structure of the films, the mechanism of samples as saturable absorber was analyzed, that the nc-Ge/SiO<sub>2</sub> films defects and interface states are the main reason for generating the passively Q-switched operation.

**Keywords:** laser technique; Nd : YVO<sub>4</sub> laser; nc-Ge/SiO<sub>2</sub> films; passive Q-switching; saturable absorber

(责任编辑: 黄晓楠 英文审校: 吴逢铁)