

表面热透镜薄膜吸收测量灵敏度提高方法

范树海^{1)†} 贺洪波¹⁾ 邵建达¹⁾ 范正修¹⁾ 赵元安¹⁾²⁾

1) 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

2) 中国科学院研究生院, 北京 100039)

(2005 年 5 月 17 日收到, 2005 年 6 月 9 日收到修改稿)

为提高表面热透镜薄膜吸收测量仪的灵敏度, 在表面热透镜衍射理论基础上, 通过数值模拟给出了探测激光腰斑半径、探测激光腰斑到样品表面距离、样品到探测光纤端面距离等仪器参数的优化方法. 经优化调整后该仪器能达到优于 0.1ppm 量级的薄膜吸收率测量灵敏度.

关键词: 吸收测量, 表面热透镜, 光热形变, 薄膜

PACC: 6770, 6570, 7865, 4225B

1. 引 言

光学薄膜的吸收是影响其性能特别是损伤阈值的重要参数. 现在高质量的实用光学薄膜的吸收率已达 10^{-6} 量级乃至更小. 传统的分光光度法、吸收谱仪^[1]、消光系数换算法^[2]、激光量热法等方法已无法满足测量要求. 光声法、光热位移法、光热光偏转法、表面热透镜法等基于光声光热技术的方法是测量薄膜材料微弱吸收的有效方法^[3,4]. 其中表面热透镜法^[5-7]由于具有灵敏度高、操作简便等优点正日益得到重视. 微弱吸收薄膜样品的光热信号很小, 常小于 $1\mu\text{V}$. 对于如此小的信号, 通过适当改变测量系统参数(如探测激光腰斑位置、探测激光腰斑大小、探测平面位置等)对信号进行优化能够有效提高测量灵敏度.

2. 表面热透镜技术简介

表面热透镜技术的原理图如图 1 所示. 强度调制的基模抽运激光会聚入射到薄膜样品表面, 薄膜吸收热量形成热波并扩散到基底引起薄膜系统的温升, 温升导致热膨胀形成“表面热包”, 这种现象也被称为“光热形变”.

从热波传导理论和线性膨胀理论出发, 通过对

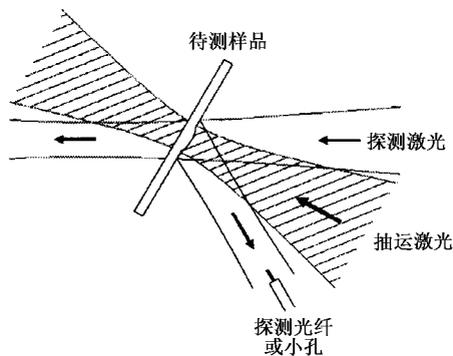


图 1 表面热透镜技术原理图

热分布区域体积和温升的近似计算, 即可得到理想薄膜系统光热形变的简化理论. 该简化理论的详细内容撰文另述.

当基底吸收远小于薄膜的吸收, 膜厚满足光薄(膜厚远小于吸收长度)热薄(膜厚远小于热扩散长度)条件, 基底满足热厚条件, 光热形变很小, 抽运激光调制频率很低, 如在几十 Hz 以下时, 样品表面的光热形变可近似的表示为^[8]

$$u(r, t) = \frac{AP_0 \alpha_T}{32fR^2 \rho_s c_s} e^{4R^2} [1 - \cos(\omega t)], \quad (1)$$

热包中心的最大形变高度 u_0 为

$$u_0 = \frac{AP_0 \alpha_T}{16fR^2 \rho_s c_s}, \quad (2)$$

† 通讯联系人. E-mail: hollytrees@163.com

(1) 式和 (2) 式中, A 为薄膜的吸收率, P_0 为抽运激光功率, α_{T_s} 为基底的线性膨胀系数(常简称为线胀系数), f 为抽运激光调制频率, R 为样品表面抽运激光光斑半径, ρ_s 为基底的密度, c_s 为基底的定压比热, r 为表面热包上某一位置到热包中心的距离, ω 为抽运激光调制角频率。

一束探测激光近乎垂直地照射到热包表面上, 热包位于探测光斑的中心且小于探测光斑。受热包的影响, 反射探测激光光强将重新分布, 这种现象被称为“表面热透镜效应”。当热包高度很低时, 根据菲涅尔衍射理论可得出反射探测激光光强分布为

$$I(r, t) = C_1 |E(r, t)|^2, \quad (3)$$

$$E(r, t) = C \frac{e^{i \arctan(z_{sw}/f) + ik(-z_{sw} + z_{sd})} \omega_0}{i \lambda z_{sd} \omega_1} \times \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \left\{ 1 - ik u_0 e^{-(\alpha^2 + \beta^2)(4R^2)} \times [1 - \cos(\omega t)] \right\} \times e^{-\frac{ik}{2q}(\alpha^2 + \beta^2) + \frac{ik}{2z_{sd}}[(x-\alpha)^2 + (y-\beta)^2]} d\alpha d\beta, \quad (4)$$

其中 z_{sw} 为薄膜样品表面到探测激光腰斑的距离, 若探测激光在到达样品前聚集, 则 z_{sw} 为负, 若探测激光在被样品反射后聚集, 则 z_{sw} 为正。 z_{sd} 为薄膜样品表面到探测平面(即探测光纤端面)的距离, 它始终为正。

表面热透镜衍射效应理论的详细内容撰文另述。

对 (2) 式 (3) 式和 (4) 式进行数值模拟的结果表明, 当 u_0 很小时 (nm 量级以下), 反射探测光斑中心的平均光强可表示为

$$I = I_{\text{probe0}}(C_2 A I_{\text{pump}} + 1), \quad (5)$$

其中 I_{probe0} 表示热包高度为 0 时反射探测激光光斑中心的平均光强。

定义光热信号为

$$S = (I - I_{\text{probe0}}) / I_{\text{probe0}} = C_2 A I_{\text{pump}}, \quad (6)$$

其中 C_2 在同样的实验参数下是一个常数, 它可通过测量吸收率已知的定标样品的光热信号来确定。这样通过 (6) 式就可以测量薄膜的吸收率。

在由 (2) 式 (3) 式和 (4) 式导出 (5) 式的过程中可知 (5) 式中参数 C_2 与抽运激光调制频率 f , 样品表面抽运激光的光斑半径 R , 探测激光束腰半径 ω_0 , z_{sw} , z_{sd} 等实验参数有关。通过数值模拟我们可以找出最大 C_2 对应的实验参数, 这对实验信号的

优化具有重要的指导意义。

3. 光热信号优化方法

3.1. 样品表面抽运光斑大小的选择

关于样品表面抽运光斑的大小, 原则上越小越好。在同样的抽运激光功率下, 样品表面的抽运激光光斑越小, 功率密度越大, 光热形变也就越明显, 而光热信号对热包的高度比对热包的直径敏感得多。根据前面的理论可以绘制出同样的抽运激光功率下, 光热信号和表面热包峰值高度随样品表面抽运激光光斑半径变化的曲线, 如图 2 所示。

由图 2 可看出, 样品表面抽运激光聚焦程度越高, 吸收测量的灵敏度越高, 同时也使吸收测量的径向空间分辨率得以提高。

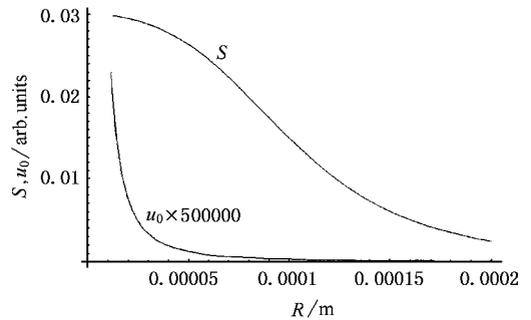


图 2 光热信号和热包峰值高度随样品表面抽运激光光斑半径的变化

3.2. 抽运激光调制频率的选择

光热形变理论和实验均表明, 调制频率越低, 光热信号越大。此外使用低调制频率也是“热薄近似条件”的要求, 这样才能避免薄膜本身除吸收率以外的性质对测量结果的影响。实验中选取 10Hz 的调制频率, 获得了较好的效果。

3.3. 探测激光腰斑到样品的距离 z_{sw} 的选择

确定了热包半径和调制频率后, 优化的目的就是寻找一个 z_{sw} , z_{sd} 和 ω_0 的最佳组合。实际上由于这三个参量都会影响光热信号 S , 它们之间的关系是互相制约的, 因而很难找到一个唯一的结果。但我们可以通过理论模拟寻找它们影响光热信号的规律, 并根据它们对光热信号影响的显著程度依次确定最佳的数值范围。

实验中发现光热信号对探测激光腰斑到样品的距离 z_{sw} 的变化较为敏感,而 z_{sw} 可通过改变探测光束聚焦透镜到样品的距离来调节,调节方便,因而我们首先确定 z_{sw} .

根据前面的理论绘制出光热信号随 z_{sw} 变化的曲线如图 3 所示.

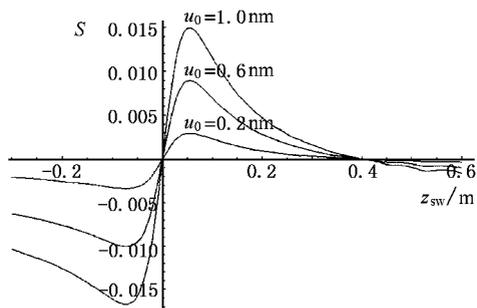


图 3 光热信号随探测激光腰斑到样品距离的变化

由图 3 可看出当 z_{sw} 为正值和负值时光热信号各有一极值,这两个极值点对应的 z_{sw} 就是最佳的探测激光腰斑位置. z_{sw} 为负时探测激光在到达样品前聚集,这时入射到样品表面的探测光束是散焦的,称为散焦探测方法; z_{sw} 为正时探测激光到达样品后聚焦,这时入射到样品表面的探测光束是聚焦的,称为聚焦探测方法.

由图 3 看出,当 u_0 较大时,采用散焦探测能获得更高的光热信号绝对值,即吸收测量灵敏度更高,但随着 u_0 变小,散焦探测和聚焦探测的灵敏度趋于相同.

由图 3 还可看出随着热包峰值高度的变化,最佳探测激光腰斑位置没有明显的变化.数值模拟也证明当 u_0 小于 1nm 时,最佳 z_{sw} 的变化不大于 1mm.

图 4 给出了散焦探测和聚焦探测时光热信号随表面热包峰值高度变化的曲线.从图中可看出两种探测方法获得的光热信号的绝对值十分接近,线性度也都较为理想.

假如光强探测器能区分的最小光强变化为万分之一,也即能测量的最小光热信号为 0.0001,则根据数值模拟结果,在图 4 的探测条件下(探测激光波长 λ 为 $0.6328\mu\text{m}$,探测激光腰斑半径 ω_0 为 $50\mu\text{m}$,热包半径为 $100\mu\text{m}$, z_{sd} 为 0.4m),在 $z_{sw} = 0.054\text{m}$ 的位置采用聚焦探测方法测量 u_0 的最高灵敏度约为 $13.4\text{pm}(10^{-12}\text{m})$;在 $z_{sw} = -0.073\text{m}$ 的位置采用散焦探测方法能测量的最小的 u_0 约为 11.9pm .对于通

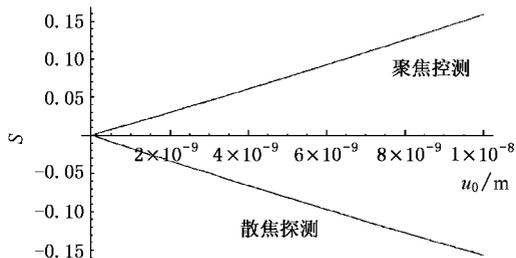


图 4 光热信号随表面热包峰值高度的变化

常 K9 基底上的介质薄膜,这样的热包峰值高度对应的薄膜吸收率在 10^{-7} 量级.

3.4. 探测激光腰斑大小 ω_0 的选择

探测激光腰斑大小的改变也会引起光热信号的变化.如图 5 所示,当 ω_0 缩小到 $10\mu\text{m}$ 时光热信号有较大幅度的提高.

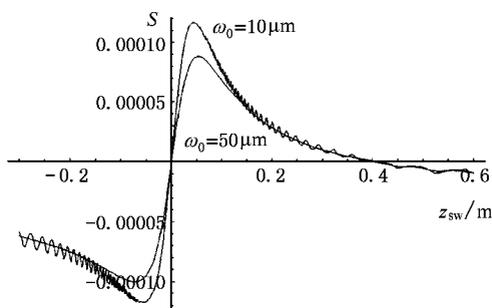


图 5 光热信号随探测激光腰斑到样品距离的变化

图 6 给出了光热信号峰值的绝对值随探测激光腰斑大小的变化.由图 6 可看出当 ω_0 变小时光热信号峰值逐步上升,而且散焦探测和聚焦探测的灵敏度趋于相同.

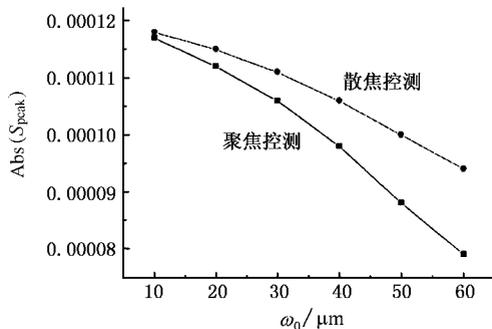


图 6 光热信号峰值绝对值随探测激光腰斑半径的变化

图 7 给出了不同 ω_0 下最佳探测激光腰斑位置(即 z_{sw})的变化.由图可见 ω_0 的变化对最佳 z_{sw} 有

一定的影响.

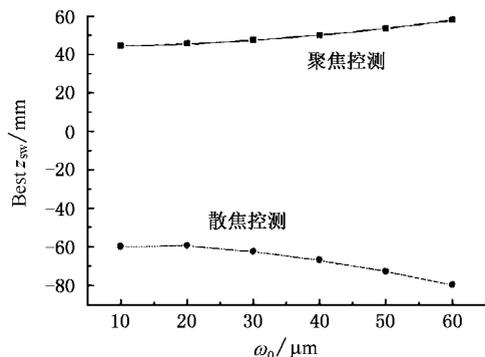


图7 最佳探测激光腰斑位置随探测激光腰斑半径的变化

前面的理论计算表明吸收测量灵敏度会随着 ω_0 的缩小而提高,而且随着 ω_0 的缩小,探测激光发散角变大,这样探测光纤更易于调节到光斑的中心,还能减小因样品法向方向偏移带来的探测光纤对准误差,还可缩小探测光纤端面到样品的距离 z_{sd} ,从而减小系统体积.但缩小激光腰斑有一定难度.实验中选取 $20\mu\text{m}$ 的探测激光腰斑能获得较为理想的结果.

数值模拟的结果表明,在前面的测试条件下,若采用 $20\mu\text{m}$ 的探测激光腰斑半径,那么对于聚焦探测,能测量最低达 10.5pm 的光热形变峰值 u_0 .若令探测光纤到待测样品的距离 z_{sd} 为 0.4m ,这时探测光纤端面上的探测激光光斑半径约为 3.6mm .相应的,对于散焦探测,能测量的最小 u_0 为 10.4pm ,此时光纤端面上的探测激光光斑半径约为 4.6mm .

3.5. 样品表面到探测平面的距离的 z_{sd} 选择

最后我们试图通过改变 z_{sd} 进一步提高光热信号.图8给出了 ω_0 为 $20\mu\text{m}$, z_{sw} 取 45.7mm 的最佳值, u_0 取 10.5pm 时光热信号随 z_{sd} 的变化.

图9给出了 ω_0 为 $20\mu\text{m}$, z_{sw} 取 -59.2mm 的最佳值, u_0 取 10.4pm 时光热信号随 z_{sd} 的变化.

从图8和图9可以看出,当 z_{sd} 不太小时,改变 z_{sd} 对光热信号的影响微乎其微.但 z_{sd} 的改变会引起探测光纤端面上探测激光光斑半径 ω_2 的明显变化. ω_2 增大便于调整探测光纤对准光斑中心,减小对准调节误差,但 ω_2 过大会导致进入光纤的光强太弱从而降低测量信噪比, z_{sd} 增大还会导致系统体积变大.对于聚焦探测,实验中选取 0.4m 的 z_{sd} 可

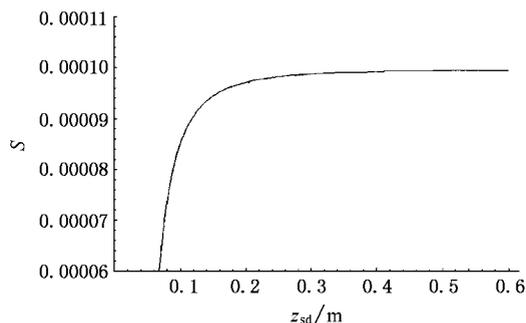


图8 聚焦探测时光热信号随样品到探测平面距离的变化

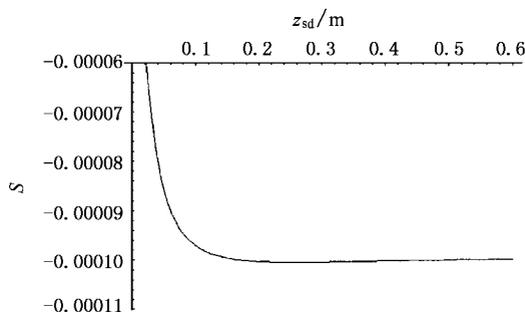


图9 散焦探测时光热信号随样品到探测平面距离的变化

获得较好的稳定性和信噪比,此时 ω_2 约为 3.6mm ;对于散焦探测,则宜选取 0.3m 的 z_{sd} ,此时 ω_2 也约在 3.6mm .

4. 优化实例

根据上面的光热信号优化方法,在如下的探测条件下:激光功率计最小能测量万分之一的光强变化,探测激光波长 λ 为 $0.6328\mu\text{m}$,热包半径为 $100\mu\text{m}$,优化参数可以这样选取:探测激光腰斑半径 ω_0 为 $20\mu\text{m}$,采用聚焦探测法时取 z_{sw} 为 45.7mm , z_{sd} 为 0.4m .散焦探测时取 z_{sw} 为 -59.2mm , z_{sd} 为 0.3m ,这样两种方法能测量的最小的光热形变峰值高度 u_0 均约为 10.4pm .

根据(1)式和(2)式描述的光热形变简化理论,对于通常 K9 基底上的常用介质薄膜,当入射到样品表面的抽运激光功率为 20W ,抽运激光调制频率为 10Hz 时, 10.4pm 的 u_0 对应的薄膜吸收率在 10^{-7} 量级.

5. 实验结果

利用表面热透镜技术建立了薄膜微弱吸收测量

仪 利用上述优化方法对各仪器参数进行调整,对一块采用双离子束溅射方法制备的 HfO_2 单层膜进行了线扫描吸收测量,获得的结果如图 10 所示.

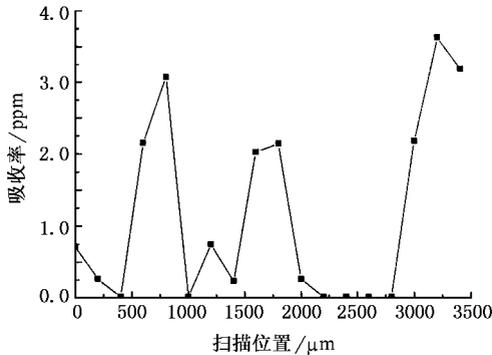


图 10 HfO_2 单层膜线扫描吸收测量结果

图 10 中吸收曲线表明该测量仪能稳定地测量 0.1ppm 量级的微弱吸收,最小的吸收率测量值达 ppb 量级. 曲线中的尖峰表明该处存在吸收缺陷.

6. 总 结

在表面热透镜技术中,为了提高薄膜微弱吸收测量灵敏度,除了尽量提高抽运激光聚集程度,适当降低抽运激光调制频率外,还应适当调节探测激光腰斑半径 ω_0 ,探测激光腰斑到待测样品的距离 z_{sw} 和探测光纤到待测样品的距离 z_{sd} .

ω_0 , z_{sw} , z_{sd} 三个仪器参数的最优化数值是互相影响、互相牵制的,根据前文所述的数值模拟方法可以找到最佳数值. 在三个仪器参数中,对吸收测量

灵敏度影响最大的是 z_{sw} ,其次是 ω_0 , z_{sd} 对灵敏度的影响是最小的,而其中易于调节的参数是 z_{sw} 和 z_{sd} . 因此,可给出如下所述的优化方法:

1) 尽可能提高待测样品表面抽运激光的聚焦程度,适当降低抽运激光调制频率,适当缩小探测激光腰斑.

2) 移动探测激光聚焦透镜令光热信号最强. 散焦探测方法和聚焦探测方法能获得相近的吸收测量灵敏度,具体采用哪种方法取决于器件的避让和调节的方便.

3) 移动探测光纤端面位置改变 z_{sd} 令光热信号最强且稳定.

进行数值模拟需要首先知道热包半径等参数,而且限于光热形变简化模型和表面热透镜衍射理论的近似性,因此通过数值模拟的方法寻找最优化的 ω_0 , z_{sw} , z_{sd} 的精确数值是有难度的. 但是,本文所给出的优化方法仍能非常好的给吸收测量仪的调试工作指明方向.

数值模拟结果表明,若激光功率计能最小能区分万分之一的的光强变化,即最小能测量 10^{-4} 的光热信号,仪器参数经优化之后最小能测量 10.4pm 的热包峰值高度,对应 K9 基底上通常介质薄膜 10^{-7} 的吸收率. 在实验中采用锁相放大器能响应小于 10^{-7} 的光强变化,因而理论上表面热透镜技术的吸收测量灵敏度可低至 10^{-10} 量级.

实验结果表明,根据本文测量理论和优化方法研制的微弱吸收测量仪,可以稳定地测量 0.1ppm 量级的微弱吸收,最小的吸收率测量值达 ppb 量级.

[1] Zhang Q F, Hou S M, Zhang G M et al 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 561 (in Chinese) [张琦锋、侯士敏、张耿民等 2001 物理学报 **50** 561]

[2] Zhang G J, Gu D H, Gan F X 2005 *Chin. Phys.* **14** 218

[3] Commandre' Mireille, Roche Pierre 1996 *Appl. Opt.* **35** 5021

[4] Yin Q R, Wang T, Qian M L 1991 *Photoacoustic and Photothermal Technique and Application* (Beijing: Science Press) pp18—24; pp38—95 (in Chinese) [殷庆瑞、王通、钱梦 1991 光声光热技术及其应用(北京:科学出版社)第 18—24 页,第 38—95 页]

[5] Wu Z L, Kuo P K, Lu Y S et al 1995 *Laser-Induced Damage in Optical Materials: SPIE* **2714** 294

[6] Chow Robert, Taylor John R, Wu Z L et al 1997 *Laser-Induced Damage in Optical Materials: SPIE* **3244** 376

[7] Li B C, Zhang S Y, Fang J W et al 1977 *Rev. Sci. Instrum.* **68** 2714

[8] Fan S H, He H B, Fan Z X et al 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 5774 (in Chinese) [范树海、贺洪波、范正修等 2005 物理学报 **54** 5774]

Method to improve absorption measurement sensitivity of thin films with surface thermal lens technique^{*}

Fan Shu-Hai^{1,2)†} He Hong-Bo¹⁾ Shao Jian-Da¹⁾ Fan Zheng-Xiu¹⁾ Zhao Yuan-An^{1,2)}

1) (*Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Shanghai 201800, China*)

2) (*Graduate School of the Chinese of Sciences, Beijing 100039, China*)

(Received 7 May 2005 ; revised manuscript received 9 June 2005)

Abstract

In order to improve the sensitivity of surface thermal lens (STL) absorption measurement , numerical simulations are performed based on STL diffraction theory . The optimization method for choosing proper instrument parameters , including the size and position of probe laser waist and the position of detecting fiber , is developed from the simulation . The sensitivity of the instrument reaches 0.1ppm after the optimization .

Keywords : absorption measurement , surface thermal lens , photo-thermal deformation , thin film

PACC : 6770 , 6570 , 7865 , 4225B

† Corresponding author. E-mail : hollytrees@163.com