

# 单层膜体吸收与界面吸收研究\*

鲁江涛 程鑫彬<sup>†</sup> 沈正祥 焦宏飞 张锦龙 马彬 丁涛 刘永利  
鲍刚华 王孝东 叶晓雯 王占山

(同济大学物理系,精密光学工程技术研究所,上海 200092)

(2010年1月12日收到;2010年7月13日收到修改稿)

采用热透镜测量方法进行了 SiO<sub>2</sub> 和 HfO<sub>2</sub> 单层膜的体吸收与界面吸收分离研究. 首先推导了光从薄膜侧及基底侧入射时单层膜内的驻波场分布,给出了单一厚度薄膜分离体吸收和界面吸收的计算方程式以及求解薄膜消光系数的方法. 利用电子束蒸发工艺制备了半波长光学厚度( $\lambda = 1064$  nm)的 SiO<sub>2</sub> 和 HfO<sub>2</sub> 单层膜,通过热透镜的测量数据实际分离了两种薄膜的体吸收和界面总吸收. 计算结果表明,对于吸收小至  $10^{-6}$  量级的薄膜来说,薄膜的界面吸收相对于体吸收不可忽略;制备 HfO<sub>2</sub> 薄膜的体吸收和界面吸收都比 SiO<sub>2</sub> 薄膜大.

**关键词:** 驻波场理论, 光热技术, 薄膜吸收, 消光系数

**PACS:** 78.20.Ci, 42.79.Wc

## 1. 引言

在现代光学和光电系统中光学薄膜几乎是必不可少的,尤其是在高功率激光系统中,光学薄膜一直是限制激光向高能量、高功率方向发展的薄弱环节<sup>[1,2]</sup>. 微弱吸收对薄膜的光学性能没有多大的影响,但却可能成为导致薄膜激光损伤的主要原因<sup>[3]</sup>. 因此寻找薄膜吸收的来源和机理,对薄膜吸收做出准确的、高灵敏度的分析具有重要的实际意义.

薄膜的吸收包括体吸收和界面吸收两部分<sup>[4]</sup>. 在强激光系统中应用的薄膜吸收已达  $10^{-5}$  量级甚至更小,此时界面吸收影响不可忽略<sup>[5]</sup>. 但是大多数方法测量的都是薄膜的界面和体的总吸收,怎样将两部分的吸收分离开来,尤其是薄膜体吸收的获得,以实现薄膜材料消光系数的推衍是薄膜工作者面临的一个难题.

Temple 等人提出了厚度变化楔形膜模型<sup>[6]</sup>,通过测量不同厚度的薄膜的总吸收来分离薄膜体吸收和各界面吸收. 这模型可以很好用于吸收在  $10^{-4}$  量级的薄膜<sup>[6,7]</sup>,但是这种方法的存在以下两个问题:首先,镀制厚度精确控制的楔形膜对于样品的制备提出了很高的要求;其次,不同厚度的薄膜由

于其非均质性、微观结构等因素的不同<sup>[8,9]</sup>,其吸收系数也不尽相同,尤其是在吸收低至  $10^{-6}$  量级的薄膜中,厚度的不同导致的吸收系数的变化是不可忽略的. 鉴于上述问题,需要寻找一种可以从单一厚度的薄膜中分离出薄膜体吸收的方法,以达到准确推导薄膜消光系数的目的. Bubbenzer<sup>[10]</sup> 通过抽运光正面和背面入射时样品吸收的变化,分离薄膜吸收和基底吸收的方法给了我们很好的启示.

借鉴 Bubbenzer 的方法,我们建立了抽运光正面和背面入射情况下半波长厚度单层膜样品的吸收方程组,提出了由单一厚度样品分离薄膜体吸收和界面吸收新方法. 同时采用了热透镜<sup>[11,12]</sup>的方法,测量了电子束蒸发方法制备 HfO<sub>2</sub> 和 SiO<sub>2</sub> 单层膜的吸收. 利用这种吸收分离的新方法成功分离了两种单层膜的体吸收系数和界面吸收系数,并得到了两种薄膜的消光系数. 证明了  $10^{-6}$  量级吸收中界面吸收的不可忽略性,也得到了两种薄膜吸收特性的相对关系.

## 2. 理论模型

### 2.1. 光学薄膜的驻波场理论

薄膜的吸收与光波在薄膜内的电场分布有密

\* 国家杰出青年科学基金(批准号:10825521)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-chengxb@tongji.edu.cn

切关系,因此了解薄膜内的电场分布是计算薄膜吸收的先决条件.下面将采用光学薄膜的驻波场理论来描述电场分布.

光波垂直入射进入单层膜后,在薄膜的界面上产生多次反射,如图 1 所示.

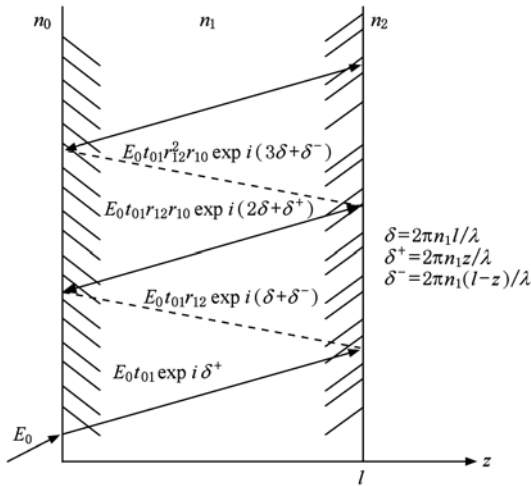


图 1 单层介质膜内的多次相干叠加

此时薄膜内部的光波场由两部分组成:右行波  $E^+(z)$  和左行波  $E^-(z)$ ,在图 1 中分别由实线和虚线表示.将同一方向传播的光波分别做相干叠加可以得到

$$E^+(z) = E_0 \frac{t_{01} \exp(i2\pi n_1 l / \lambda)}{1 - r_{12} r_{10} \exp(i4\pi n_1 l / \lambda)}, \quad (1)$$

$$E^-(z) = E_0 \frac{t_{01} r_{12} \exp[i2\pi n_1 (2l - z) / \lambda]}{1 - r_{12} r_{10} \exp(i4\pi n_1 l / \lambda)}, \quad (2)$$

其中  $r_{ij} = (n_i - n_j) / (n_i + n_j)$ ,  $t_{ij} = 2n_i / (n_i + n_j)$  分别为正入射时界面上的菲涅耳反射和透射系数,  $n_0, n_1$  和  $n_2$  分别为入射介质空气,薄膜和基底的折射率,  $l$  为薄膜的厚度,  $E_0$  为入射光的电场强度,  $\lambda$  为入射光波长.

右行波和左行波叠加可以得到薄膜内总电场强度的平方

$$E^2(z) = E_0^2 \frac{t_{01}^2 \{1 + r_{12}^2 + 2r_{12} \cos[4\pi n_1 (z - l) / \lambda]\}}{1 - 2r_{12} r_{10} \cos(4\pi n_1 l / \lambda) + (r_{12} r_{10})^2}. \quad (3)$$

一般情况下,由于基底的厚度是有限的,其背面的反射不能忽略,通常要对背面反射考虑非相干的叠加.但是在弱吸收测量的过程中,抽运光采用的是激光光源,相干长度一般大于基底的厚度,在这种情况下,基底背面的反射应该采用相干叠加,这必然对基底的厚度提出了 nm 量级的精度要求,

较难实现.为了排除背面反射的干扰,我们在吸收测试中,将样品倾斜一个微小的角度,由于抽运光的光束半径非常小(80  $\mu\text{m}$ ),背面反射的抽运光与入射抽运光分离开来,产生的干涉效应可以忽略,并且这种微小倾斜处理对菲涅耳系数计算的影响也非常小.

由此可以得到光从正面(薄膜侧)入射时,薄膜中的电场分布

$$E_f^2(z) = E_0^2 \frac{t_{01}^2 \{1 + r_{12}^2 + 2r_{12} \cos[4\pi n_1 (z - l) / \lambda]\}}{1 - 2r_{12} r_{10} \cos(4\pi n_1 l / \lambda) + (r_{12} r_{10})^2}. \quad (4)$$

光从背面(基底侧)入射时,薄膜中的电场分布

$$E_b^2(z) = (1 - R_s) E_0^2 \times \frac{t_{21}^2 \{1 + r_{10}^2 + 2r_{10} \cos[4\pi n_1 z / \lambda]\}}{1 - 2r_{10} r_{12} \cos(4\pi n_1 l / \lambda) + (r_{10} r_{12})^2}, \quad (5)$$

其中

$$R_s = (n_2 - n_0)^2 / (n_2 + n_0)^2. \quad (6)$$

## 2.2. 单层膜体吸收的计算

假设入射介质折射率为  $n_0$ ,对于各向同性的均匀弱吸收光学介质,折射率为  $n_1$ ,厚度为  $l$ ,体吸收系数为  $\alpha$ ,它的体吸收  $A$  可以表示为以下的形式:

$$A = \frac{\alpha n_1}{n_0 E_0^2} \int_0^l E^2(z) dz. \quad (7)$$

分别将(4)和(5)式代入可以得光从正面(薄膜侧)和反面(基底侧)入射时薄膜的体吸收

$$A_V = \alpha l \Phi_1, \quad (8)$$

$$A'_V = \alpha l (1 - R_s) \Phi_2, \quad (9)$$

其中  $\Phi_1$  和  $\Phi_2$  为薄膜内电场强度平方的平均项,分别由下面两式表示:

$$\Phi_1 = \frac{n_1}{n_0} \frac{t_{01}^2}{1 - 2r_{12} r_{10} \cos(4\pi n_1 l / \lambda) + (r_{12} r_{10})^2} \times \left[ 1 + r_{12}^2 + \frac{r_{12} \lambda}{2\pi n_1 l} \sin(4\pi n_1 l / \lambda) \right], \quad (10)$$

$$\Phi_2 = \frac{n_1}{n_2} \frac{t_{21}^2}{1 - 2r_{12} r_{10} \cos(4\pi n_1 l / \lambda) + (r_{12} r_{10})^2} \times \left[ 1 + r_{10}^2 + \frac{r_{10} \lambda}{2\pi n_1 l} \sin(4\pi n_1 l / \lambda) \right], \quad (11)$$

对于  $m\lambda/4$  ( $m$  为正整数)膜系,(10),(11)式可以分别简化为

$$\Phi_1 = \frac{n_1}{n_0} \frac{t_{01}^2}{[1 - (-1)^m r_{12} r_{10}]^2} \times (1 + r_{12}^2), \quad (12)$$

$$\Phi_2 = \frac{n_1}{n_2} \frac{t_{21}^2}{[1 - (-1)^m r_{12} r_{10}]^2} \times (1 + r_{10}^2). \quad (13)$$

### 2.3. 薄膜体吸收的分离

单层膜的吸收由四个部分组成:空气-薄膜界面吸收、薄膜体吸收、薄膜-基底界面吸收和基底吸收. 当基底材料吸收远小于薄膜材料时,基底对吸收的贡献可以忽略,薄膜的总吸收可以表示为如下形式:

$$A = E_{af}^2 p_{af} + E_{fs}^2 p_{fs} + \frac{\alpha n_1}{n_0 E_0^2} \int_0^l E^2(z) dz, \quad (14)$$

其中  $E_{af}^2$  和  $E_{fs}^2$  分别为两个界面上的电场强度,  $p_{af}$  和  $p_{fs}$  表征薄膜的界面吸收系数,  $\alpha$  为薄膜的体吸收系数, 等式右边前两项表示两个界面的吸收,  $l$  是薄膜的厚度, 第三项表示薄膜的体吸收. 实际测得的吸收是这三个部分的总和, 下面讨论如何将薄膜的体吸收从总吸收中分离出来.

考虑薄膜的光学厚度为  $\lambda/2$  的整数倍, 根据驻波场理论的计算, 空气-薄膜界面和薄膜-基底界面处具有相同的电场强度, 即  $E_{af} = E_{fs}$ . 因此可以将两个界面吸收系数合并为总的界面吸收系数  $p = p_{af} + p_{fs}$ , 分别考虑光从正面和背面入射的情况, 可以得到

$$A = E_{af}^2 p + \alpha l \Phi_1, \quad (15)$$

$$A' = E_{af}'^2 p + \alpha l (1 - R_s) \Phi_2, \quad (16)$$

上面两式中  $A$  和  $A'$  可以通过热透镜的方法来测定,  $E_{af}^2$  和  $E_{af}'^2$  分别由(4)和(5)式确定,  $\Phi_1$  和  $\Phi_2$  由(12)和(13)式确定. 此时等式(15), (16)只包含两个未知量, 构成二元一次方程组, 联立求解可以得到薄膜的体吸收系数  $\alpha$  和总的界面吸收系数  $p$  为

$$\alpha = \frac{1}{l} \frac{E_{af}'^2 A - E_{af}^2 A'}{E_{af}'^2 \Phi_1 - E_{af}^2 (1 - R_s) \Phi_2}, \quad (17)$$

$$p = \frac{\Phi_1 A' - (1 - R_s) \Phi_2 A}{E_{af}'^2 \Phi_1 - E_{af}^2 (1 - R_s) \Phi_2}, \quad (18)$$

薄膜的消光系数就可以根据下面的公式计算出来

$$k = \alpha \lambda / 4\pi. \quad (19)$$

## 3. 实验结果与分析

### 3.1. 样品制备

由于基底的吸收也可能对测量薄膜总吸收产生干扰, 为了排除基底的干扰, 我们采用清洗好的微弱吸收的融石英基板<sup>[13]</sup>, 测量得到它的体吸收

系数小于  $10^{-4}/\text{cm}$ , 远小于薄膜的体吸收系数 ( $>10^{-2}/\text{cm}$ ), 可以忽略. 单层膜的制备采用的是电子束蒸发的方法. 镀制  $\text{SiO}_2$  薄膜时, 基板温度和真空腔的气压分别是  $250^\circ\text{C}$  和  $8 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ ; 镀制  $\text{HfO}_2$  单层膜时, 基板温度和真空腔的气压分别是  $250^\circ\text{C}$  和  $3 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ . 在测试角度下单层膜的等效光学厚度都约为  $532 \text{ nm}$ , 即为吸收测试抽运光波长的  $1/2$ , 以满足两个界面上电场相等的原则.

### 3.2. 样品测试

样品的光谱测试是在 Cary5000 分光光度计上完成的. 根据基板和薄膜的透过率曲线, 我们采用 Optlayer 软件拟合的办法, 来得到样品实际的厚度和折射率信息, 见表 1.

表 1 样品测试和拟合结果

样品	光学厚度 ( $\lambda = 1064 \text{ nm}$ )	折射率 $n$	吸收/ $10^{-6}$	
			正面入射	背面入射
$\text{SiO}_2$ 单层膜	$\lambda/2$	1.47	$1.20 \times \delta$	$1.38 \times \delta$
$\text{HfO}_2$ 单层膜	$\lambda/2$	1.88	$2.24 \times \delta$	$2.85 \times \delta$
熔石英基底	5 mm	1.45	$< 0.02 \times \delta$	

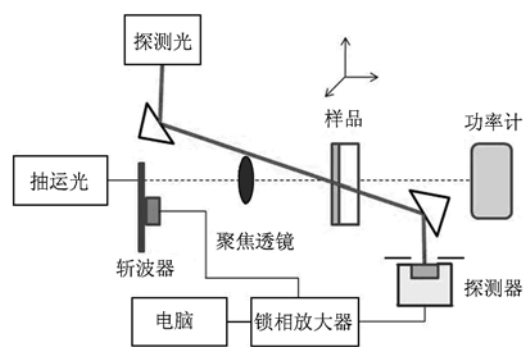


图 2 光热共路干涉仪原理图

制备样品的实际光学厚度与设计的理想厚度可能存在微小的差异, 但是模拟计算发现二者之间 1% 的差异对计算结果的影响可以忽略. 样品的吸收测试采用的斯坦福大学研制的光热共路干涉仪. 这是基于热透镜理论微弱吸收的测试器, 采用交叉的双光束探测系统, 如图 2. 该仪器具有很高的灵敏度和空间三维分辨能力, 对于薄膜吸收的测量精度可以达到  $10^{-8}$ . 此外, 热透镜法测量吸收的另一个重要的优点在于它对散射光不敏感. 这是因为热透镜

法的测量原理是样品吸收抽运激光能量引起折射率的梯度变化,使得通过这一区域的探测光光强分布发生变化,探测信号的大小正比于抽运激光的能量,而样品散射损耗不足 0.1%,这对探测信号的影响也不到 0.1%,因此这种测量方法可以有效排除散射光的影响. 相关的仪器常数和测量常数如表 2 所示.

表 2 吸收测量实验参数

抽运光波长/nm	1064
探测光波长/nm	633
探测光功率/mW	5
抽运光功率/W	1.76
调制频率/Hz	18
灵敏度/ $10^{-7}$	10
纵向分辨率/mm	1
横向分辨率/ $\mu\text{m}$	50

值得注意的是,热透镜方法是一种相对测量. 为得到薄膜吸收的绝对数值,我们采用 Newport 公司提供的吸收为 22.2% 的标片进行校准. 但是考虑到校准标片的吸收远大于实验所测薄膜的吸收,采用相对测量的处理方法可能会带来一定的误差,因此测量得到的吸收可以看成是实际绝对吸收数值乘以一个相对系数  $\delta$  得到. 对于本实验而言,由于测量吸收所用的参数相同,而且薄膜的吸收量级也类

似,相对系数  $\delta$  应该相同. 而且本文更关心的是体吸收和界面吸收的相对关系,这种处理不会改变界面吸收和体吸收的相对大小,对于吸收系数和消光系数的影响也只是  $\delta$  倍数的影响. 如果要得到准确的消光系数和吸收系数,必须采用能测量绝对吸收的方法进行类似微弱吸收的样品进行校准,激光量热法<sup>[14]</sup>是一个很好的选择.

利用该仪器分别对抽运光从样品正面和背面入射时  $\text{HfO}_2$  和  $\text{SiO}_2$  薄膜的吸收进行了测试,见表 1. 为了得到较高的测量精度,实验中我们采取多次点扫描和面扫描相结合的方法,有效的消除了薄膜中缺陷的影响并减少了测量的随机误差. 需要说明的是,由于实验用弱吸收仪的纵向分辨率是 1 mm,而薄膜的厚度不到不到 1  $\mu\text{m}$ ,因此表中薄膜吸收实际上是薄膜和 1 mm 厚石英基板的总吸收;但是裸基底的测试表明,1 mm 石英基板的吸收小于  $0.02 \times 10^{-6}$ ,远小于薄膜的吸收,所以本实验中基底吸收的影响可以排除.

### 3.3. 实验结果与分析

结合测量得到的光学参数可以计算出界面处的电场强度和薄膜中的电场分布,利用前面提到的界面吸收和体吸收分离的方法,可以实现薄膜的界面吸收和体吸收分离并得到对应的消光系数如表 3 所示.

表 3 界面吸收和体吸收分离结果由于相对测量的误差影响,最终的数据结果都应该表示为表中数据乘以相对误差系数  $\delta$

样品	吸收/ $10^{-6}$				界面吸收系数 / $10^{-7}$	体吸收系数 / $10^{-2} \text{ cm}^{-1}$	消光系数 / $10^{-7}$
	体	界面	体	界面			
$\text{SiO}_2$ 薄膜	1.06	0.14	1.11	0.27	2.0	3.0	2.6
$\text{HfO}_2$ 薄膜	1.88	0.36	2.10	0.73	5.4	6.7	5.6

分析计算结果可以得到以下规律:

1) 对于实验中的两种薄膜,光从正面入射时薄膜的体吸收和界面吸收均大于光从背面入射的情况,这是由于实验中的两种薄膜,其折射率均大于基底,因此当光从正面入射时,薄膜内的平均电场强度和界面上的电场强度均大于背面入射的情况,吸收的大小实际反应的是电场强度的大小.

2) 电子束蒸发的方法制备的  $\text{SiO}_2$  和  $\text{HfO}_2$  薄膜的本征吸收非常小,都是在  $0.01 \text{ cm}^{-1}$  量级,对应的

消光系数在  $10^{-7}$  左右,这与文献[15]中给出的相近.

3) 界面吸收是薄膜微弱吸收的主要组成部分. 对于本实验的两种薄膜来说,界面上的总吸收相对于薄膜体吸收来说不可忽略. 因此薄膜的消光系数的计算不能简单地通过测定的薄膜的总吸收来计算.

4) 制备  $\text{HfO}_2$  薄膜的体吸收和界面吸收均大于  $\text{SiO}_2$  薄膜.

## 4. 结 论

本文从单层膜的电场分布入手, 计算和推导了光分别从薄膜侧和基底侧入射时单层膜界面电场强度和薄膜内部的平均电场, 建立了两种情况下薄

膜弱吸收理论方程组. 通过对光学厚度为  $\lambda/2$  单层膜吸收的计算, 成功分离出薄膜体吸收, 推导出了  $\text{HfO}_2$  和  $\text{SiO}_2$  薄膜的消光系数. 实验结果表明: 界面吸收是薄膜吸收中不可忽略的一部分; 在所选取的镀膜参数条件下, 无论是体吸收还是界面吸收  $\text{HfO}_2$  薄膜都大于  $\text{SiO}_2$  薄膜.

- [1] Ephstein E M 1970 *Sov. Phys. JETP* **41** 2213
- [2] Chow R, Taylor J R, Wu Z L 2000 *Appl. Opt.* **39** 650
- [3] Li B C, Martin S, Welsch E 1999 *SPIE* **3902** 145
- [4] Wu Z L, Fan Z X 1989 *Acta Opt. Sin.* **9** 630 (in Chinese) [吴周令、范正修 1989 光学学报 **9** 630]
- [5] Commandré M, Rolhe P, Borgogno J P, Albrand J 1994 *Optical Interference Coatings, Proc. Soc. Photo-Opt. Instrum.* **2253** 1253
- [6] Temple P A 1979 *Appl. Phys. Lett.* **34** 677
- [7] Welsch E, Walther H G, Kühn H J 1987 *J. Physique* **48** 419
- [8] Lehan J P, Mao Y, Bovard B G, Macleod H A 1991 *Thin Solid Films* **203** 227
- [9] Borgogno J P, Flory F, Roche P, Schmitt B, Albrand G, Pelletier E, Macleod H A 1984 *Appl. Opt.* **23** 3567
- [10] Bubenzer A, Koidl P 1984 *Appl. Opt.* **23** 2886
- [11] Power J F 1990 *Appl. Opt.* **29** 52
- [12] Fan S H, He H B, Shao J D, Fan Z X, Zhao Y A 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 758 (in Chinese) [范树海、贺洪波、邵建达、范正修、赵元安 2006 物理学报 **55** 758]
- [13] Guntau M, Triebel W 2006 *Review of Scientific Instruments* **71** 2279
- [14] Li B C, Xiong S M, Blaschke H, Ristau D 2006 *Chinese Journal of Lasers* **33** 823 (in Chinese) [李斌成、熊盛明、Holger Blaschke、Detlev Ristau 2006 中国激光 **33** 823]
- [15] Dijon J, Rafin B, Pellé C 2000 *Proc. SPIE* **3902** 158

## Volume and interface absorptions of single layer\*

Lu Jiang-Tao Cheng Xin-Bin<sup>†</sup> Shen Zheng-Xiang Jiao Hong-Fei Zhang Jin-Long Ma Bin Ding Tao  
Liu Yong-Li Bao Gang-Hua Wang Xiao-Dong Ye Xiao-Wen Wang Zhan-Shan

(Institute of Precision Optical Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China)

(Received 12 January 2010; revised manuscript received 13 July 2010)

## Abstract

The volume absorptions and the interface absorptions of  $\text{SiO}_2$  and  $\text{HfO}_2$  single layers are studied using the thermal lens method. Based on the fact that electric field distributions in single layers are different when the films are illuminated from the coating side and substrate side, an equation is given to calculate volume and interface absorptions of single layers. Half wave  $\text{HfO}_2$  and  $\text{SiO}_2$  single layers are prepared by electron beam evaporation method. With the absorption data measured by thermal lens technique, we separate the volume absorption from the interface absorption for these two single layers. The results show that interface absorption is non negligible when the absorption of film approaches to a ppm level. Additionally, the  $\text{HfO}_2$  single layer shows bigger volume and interface absorptions than  $\text{SiO}_2$  single layer.

**Keywords:** standing-wave theory, thermal lens, film absorption, extinction coefficient

**PACS:** 78.20.Ci, 42.79.Wc

\* Project supported by the National Natural Science Fund for Distinguished Young Scholars, China (Grant No. 10825521).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: chengxb@tongji.edu.cn