

用注入型共焦球面法布里-珀罗腔测量薄膜的微弱光吸收

余勤跃 戎忠华 徐毓光 陈守华

(中国科学院上海光机所)

H. A. Schuessler

(Dept. of Physics, Texas A & M Univ., College Station, USA)

Weak absorption measurement of films by means of injection
confocal spherical Fabry-Perot cavity

Yu Qingyue, Rong Zhonghua, Xu Yuguang, Chen Shouhua

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

H. A. Schuessler

(Dept. of Physics, Texas A & M Univ., College Station, USA)

提要: 本文概述用注入型共焦球面法布里-珀罗腔高精度测量微弱光吸收的原理、装置及典型的测量结果。用本文装置检测光程变化可达0.1nm量级,检测光吸收的灵敏度达 1.7×10^{-5} ,并可适用于检测光热动态过程和光热瞬变过程。

关键词: 共焦法布里-珀罗腔,薄膜吸收,光热

光程长度的变化可达到0.1(nm)级,检测薄膜吸收率的灵敏度达 10^{-5} 以上。

一、引言

在已有的薄膜微弱吸收测量方法中,比较熟知的有量热法、光热偏折法、光热透镜法^[1]、光热干涉测量^[2]、光声法^[3]等等。这些方法,都从不同的方面努力降低噪声,以求提高信号衬度和信号灵敏度。

本文设想用光学的方法改进测量灵敏度和精度,即用法布里-珀罗腔高精度测量薄膜的微弱光吸收。实质上,是在光热干涉测量法的基础上,用法布里-珀罗干涉仪替代普通双光束干涉仪,以达到抑制噪声和提高衬度的目的。分析和实验结果表明,用此法检测

二、实验方法

图1是实验装置,单纵模He-Ne激光束首先经过望远镜使光束的腰斑尺寸及位置与法布里-珀罗共焦腔匹配,即满足(1) $\omega_0 = \sqrt{\frac{\lambda L}{2\pi}}$ (L 为腔长), $L=70$ mm, $\lambda=0.6328$ μm , 则 $\omega_0=84$ μm ; (2) 腰斑位置位于腔的中心,然后再经分束镜分成两束同时注入到法布里-珀罗腔内。其中光束 S_1 用于稳定腔

收稿日期: 1988年3月24日。

的工作点,使腔稳定在谐振峰的腰部(斜率最大)。光束 S_2 作为探测光束,掠过置于腔内的薄膜样品 P , 泵浦光束 S_3 (氦离子激光束或其它强光束)经聚焦后垂直入射到薄膜表面。薄膜表面对泵浦光束的微弱吸收所引起的温升,将改变周围空气的折射率,使探测光束 S_2 发生位相移动。由于法布里-珀罗腔的谐振峰很窄,腰部的斜率很大,因此空气介质的微小折射率变化,都将引起输出光强的较大变化。例如当腔的精细度为 50、光程变化 $\lambda/1000$ (0.6 nm) 时,输出光的强度有 10% 的变化。另外由于光热畸变区温度不均匀光线除了位相变化外还发生偏折。由非均匀介质的光线传输方程可得偏转角 ϕ :

$$\phi = \frac{1}{n_0} \int \frac{dn}{dz} ds \approx \frac{dl}{dz}$$

其中, n_0 为空气折射率, s 为光线传输路径, z 为光线与样品表面的距离, l 为光热引起的光程变化。由于 $l \sim 0.1 \text{ nm}$, $z \sim \text{mm}$, 所以 $\phi \sim 10^{-7} \text{ rad}$ 。这一偏折使镜面上光斑移动 $4 \times 10^{-6} \text{ mm}$, 这与镜面上光斑尺寸 0.2 mm 相比是极小的。因此,偏折对测量的影响完全可以忽略。

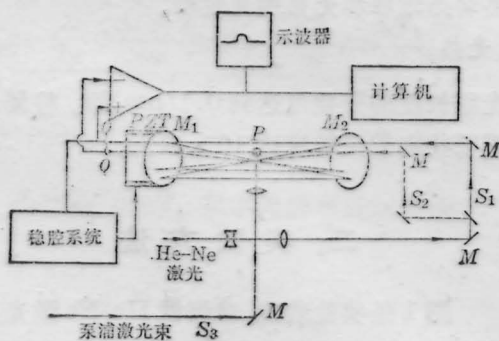


图1 用共焦球面法布里-珀罗腔测量薄膜微弱吸收的装置图

P —薄膜样品; M_1, M_2 —法-珀腔球面腔镜;
 PZT —压电陶瓷; M —反射镜; S —分束镜;
 Q —光电二极管

对于一个注入型球面共焦法布里-珀罗腔,共有四路输出,其中第一路输出光束被探测,其光强是^[4]

$$I_A = \frac{I_0(1-R)^2}{(1-R^2)^2 + 4R^2 \sin^2 \frac{\delta}{2}} \quad (1)$$

其中, I_0 是注入光束的光强, R 是腔镜的反射率, $\delta = 2\pi\omega/\lambda$ (ω 是光束在腔内循环一次的全部光程)。在此,已假定腔内无损耗。 I_A 是位相参数 δ 的函数,为了求出测量灵敏度和量程,先计算

$$\frac{dI_A}{d\delta} = \frac{-2I_0(1-R)^2 R^2 \sin \delta}{[(1-R^2)^2 + 4R^2 \sin^2 \delta/2]^2} \quad (2)$$

$$\frac{d^2 I_A}{d\delta^2} = \frac{-I_0(1-R)^2}{[(1-R^2)^2 + 4R^2 \sin^2 \delta/2]^2} \times \left[2R^2 \cos \delta - \frac{8R^4 \sin^2 \delta}{(1-R^2)^2 + 4R^2 \sin^2 \delta/2} \right] \quad (3)$$

在测量灵敏度最高的工作点,应有:

$$\frac{d^2 I_A}{d\delta^2} = 0 \quad (4)$$

此即

$$2Bz^2 - (2A+3B)z + A = 0, \quad (5)$$

式中 $A = 2R^2(1-R^2)^2$, $B = 8R^4$, $z = \sin^2 \delta/2$ 。当反射率 R 接近 1 时,方程(5)的解是

$$z_0 = \frac{(2A+3B) - \sqrt{(2A+3B)^2 - 8AB}}{4B} \quad (6)$$

以此代入(2)式,求得光程变化的最高检测灵敏度:

$$\eta = |\Delta_f \omega| = \frac{\lambda}{2\pi} |\Delta_f \delta| = \frac{\lambda}{2\pi} \frac{|\Delta_f I_A|}{I_{\omega_0}} \frac{(1-R^2)^2 + 4R^2 z_0}{R^2 \sqrt{z_0(1-z_0)}}, \quad (7)$$

其中 I_{ω_0} 是工作点处的输出光强:

$$I_{\omega_0} = \frac{I_0(1-R)^2}{(1-R^2)^2 + 4R^2 z_0} \quad (8)$$

在图1的测量系统中,稳腔系统使法-珀腔稳定于设定的工作点,但仍有相当量的残余噪声。这些噪声主要来源于环境振动和气流扰动中的某些频率成份。一般说,这类噪声是大尺寸的,因而将同时作用于稳腔光束 S_1 和探测光束 S_2 , 在 S_1 和 S_2 的输出光束中,噪声的位相是相同的。通过电子线路,使

S_1 和 S_2 的光强信号相减, 可有效地滤去残余噪声。图 2(a) 和图 2(b) 分别是相减前后探测光束的本底信号, 表明经过双光束相减之后, 噪声被大幅度地削弱。

用双光束结构消减系统噪声后, 再用计算机重复采数并取平均, 尚可进一步消除残存的噪声。测量表明, $|ΔI_A|/I_{∞}$ 的测量精度可优于 4×10^{-3} 。设 $R=0.98$, 则灵敏度 $\eta \approx 1.2 \times 10^{-4} \lambda \approx 0.1 \text{ nm}$, (设 $\lambda = 632.8 \text{ nm}$)。

腔的品质因子 Q 愈高, η 值就愈小。当输入光束的腰斑尺寸及位置与腔匹配时, 提高腔镜的反射率 R , 可提高腔的 Q 值。但 Q 值太大, 稳腔困难也增大。因此, Q 不能无限增大。本文实验中选用 $R=98\%$ 的腔镜。

I_A 和 δ 间的函数关系不是线性的, 这将影响测量精度。为了保证测量精度, 只好限制量程范围, 使 $dI_A/d\delta$ 在此范围内变化不大。可以 $dI_A/I_0 d\delta$ 与 δ 的函数关系确定。例如, 若灵敏度最高的工作点是 $\delta_0 = 2.4 \times 10^{-2}$, 允许 $dI_A/I_0 d\delta$ 变化 10% , δ 的量程范围是 $M_\delta = 2 \times 10^{-2}$, 换算到光程长度后, $M_\omega = 2 \text{ nm}$, 此值是测量灵敏度 $\eta = 0.1 \text{ nm}$ 的 20 倍。假如不受 I_A 与 δ 间线性关系的约束, 量程可以大大扩大, 但相应的 δ 值应从 (1) 式计算求出。

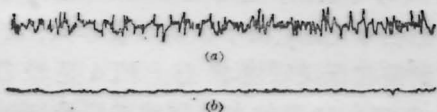


图 2 相减前(a)和相减后(b)探测光束的本底噪声

为了完成测量, 特别是为了使噪声达到有效消除, S_1 光束和 S_2 光束必需同拍, 即在法-珀腔内, 这二个光束循环一周的光程必须相等(或相差波长 λ 的整数倍)。这时, 当法-珀腔长扫描时, 应可见二组谐振峰信号严格同步。计算和实验均表明, 光束的环路光程随着入射点位置和入射方位改变而缓慢变化。通过精密调整 S_1 光束的入射方位和入

射点位置, 可使 S_1 光束达到与 S_2 光束理想同拍。

探测光束 S_2 与待测薄膜面的垂直距离称为工作距离 d , d 值与信号幅度有密切关系。定量测量时, 必须准确控制工作距离。图 3(a) 是维持其它条件不变, 只改变工作距离时的一组测量数据。其中横坐标是从泵浦光束 S_3 进入开始计时的时间, 纵坐标是光强的相对读数。数据表明泵浦光束辐照薄膜之后, 空气介质折射率分布发生变化并渐渐达到饱和。图中的曲线族是与实验数据最佳拟合的一组指数函数 $I_A = I_{s1}(1 - e^{-t/\tau_i})$ 。图 3(b) 表示饱和信号强度 I_s 与相应的工作距离 d 的关系, 可见若选定工作距离 $d = 0.5 \text{ mm}$, 且要求 I_A 的相对读数精度是 $\pm 5\%$, 则定位精度 $\Delta d \approx \pm 0.1 \text{ mm}$ 。

泵浦光束 S_3 的强度起伏也会影响测量精度。使用不同功率的泵浦时, 探测光束 S_2 的强度随时间的变化, 与图 3(a) 类似, 呈指数关系。而信号饱和值 (I_s) 与泵浦光束功率 (W) 间有线性关系。因此, 在测量信号的同时监视泵浦光束功率的变化, 并进行功率归一化。这样就可消除功率起伏引起的误差。

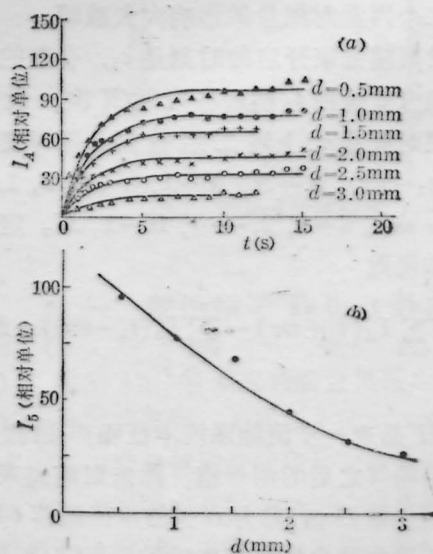


图 3

(a) 当工作距离 d 为不同值时, 信号 I_A 与时间 t 的关系;
(b) I_A 的饱和值 I_s 与工作距离 d 的关系

失共焦后的法布里-珀罗腔,由于模式失匹配和光束横向移动等二个因素,其谐振峰的幅度要降低,宽度要增大^[4]。这时, $dI_A/d\delta$ 将变小,而量程将变大。据此,可以通过失共焦调整,以获得所要求的测量灵敏度和量程范围。

选取以光度法绝对定标吸收率的薄膜作为参考基准,通过调节法-珀腔的失共焦量逐步提高其测量灵敏度,可以逐次标定一组不同吸收率的薄膜作为测量基准。待测薄膜的吸收率将通过与基准薄膜信号量的比对给出。

三、测量结果

根据不同的实验目标,进行多种方式测量,以考核本文装置的性能。

(1) 测量薄膜样品的光吸收率。经过双光束信号反相叠加之后,噪声虽被有效抑制,但仍有相当残留。此外,系统的工作点难免直流漂移。为了获得高测量精度,这些因素尚需进一步排除。用计算机快速测量 I_A 并采用合理的数据采集方式及数据处理,可使上述二个因素对测量的影响大大减弱。

设泵浦光束开启的时刻是 t_1 ,合理的数据采集方式是在 t_1 前后各采数 N 次。设采集间隔时间是 τ ,上述二组数据分别可表示为 $I_A(t_1 - n\tau)$, $n = N, N-1, \dots, 2, 1$ 和 $I_A(t_1 + n\tau)$, $n = 1, 2, \dots, N-1, N$ 。定义测量值函数

$$H = \left\{ \sum_{n=1}^N I_A(t_1 + n\tau) - \sum_{n=1}^N I_A(t_1 - n\tau) \right\} \div N. \quad (9)$$

函数 H 是进一步消除系统本征噪声和扣除系统慢漂移之后的信号值。除去泵浦光束 S_3 后所测得的 H 值,称为 H 值的本征涨落 δH ,由 δH 可推导出该测量方法的极限灵敏度。

取 $N = 1280$, $\tau = 100 \mu s$, 泵浦光束是功率 $W = 2 W$ 的氩激光束,待测样品是经不同

温度热处理过的 Ti_3O_5 薄膜。每块膜层都反复测量多次,以求出读数的相对误差。其测量结果如表 1 所示。

表 1 不同热处理的 Ti_3O_5 单层膜的光吸收率测量结果

热处理条件	$H \pm \Delta H$	吸收率 $\sigma \pm \Delta\sigma$
不处理	37 ± 2	$(2.15 \pm 0.12) \times 10^{-3}$
200°C 烘烤	28 ± 2	$(1.62 \pm 0.12) \times 10^{-3}$
400°C 烘烤	17 ± 2	$(0.99 \pm 0.12) \times 10^{-3}$

除去泵浦光束后,测得 H 的本征涨落 $\delta H = 0.3$,所以光吸收率的检测灵敏度极限是 1.7×10^{-5} 。此外,表 1 数据表明,吸收率测量的相对误差是 10% 左右,绝对精度是 1.2×10^{-4} 。

(2) 薄膜光吸收过程的动态研究。当泵浦光束辐照薄膜样品时,发生一系列物理过程。例如薄膜及基底对光束的吸收以及热量在膜层、基底和空气中的传导与扩散。通过动态过程的实时检测,可验证理论模型的真实可靠性和建立高精度的定量分析方法。但是,由于薄膜的光吸收率十分微弱,动态过程信号一般不易获得。本文装置信噪比高,即使薄膜的吸收率十分微弱,其输出信号也可以直接用示波器或计算机检测。前面所介绍的图 3(a) 等数据,是用氩激光束辐照铝膜时的动态信号记录,由于铝膜吸收率大,法-珀腔被调整在低灵敏度状态。图 4 是吸收率为 4×10^{-4} 的薄膜的光吸收动态信号,这时的法-珀腔被调整在高灵敏度状态。图 6 信号顶部的噪声残余,说明稳腔光束 S_1 和探测光束 S_2 尚未被调到严格同拍。

(3) 光热瞬态过程的观察。前面所介绍的情况,泵浦光束都是连续波氩激光束。若将脉冲激光束作为泵浦光束,便可观察光热瞬态过程。已观察到薄膜靶受 YAG 单脉冲激光束辐照后,周围空气先压缩,后稀疏,然后

(下转第 125 页)

心波长在 564 nm 处的 $4G_{5/2} - 6H_{5/2}$ 跃迁, 中心波长在 600 nm 的 $4G_{5/2} - 6H_{7/2}$ 跃迁, 中心波长在 646 nm 处的 $4G_{5/2} - 6H_{9/2}$ 跃迁和 690—710 nm 波段的 $4G_{5/2} - 6H_{11/2}$ 跃迁。其中最强线为 646 nm 波长发射, $\frac{1}{e}$ 处线宽约为 2 nm, 其它波段没有明显的荧光峰。

3.4 激发光谱

用 850 型紫外可见荧光分光光度计测出范围在 300~580 nm 波长的激发光谱, 图 5 表示的就是 $\text{Na}_5\text{Sm}(\text{WO}_4)_4$ 晶体室温下 646 nm 荧光发射的激发光谱。其中以 405 nm 的激发效果最佳, 它对应于 $6H_{5/2} - 6P_{3/2}$ 的吸收跃迁, 其次是 360 nm 的激发, 它对应于 $6H_{5/2} - 6P_{5/2}$ 的吸收跃迁。

对照图 3 与图 5 可以看到, $\text{Na}_5\text{Sm}(\text{WO}_4)_4$ 晶体的吸收光谱与激发光谱在 300 nm~540 nm 波段内

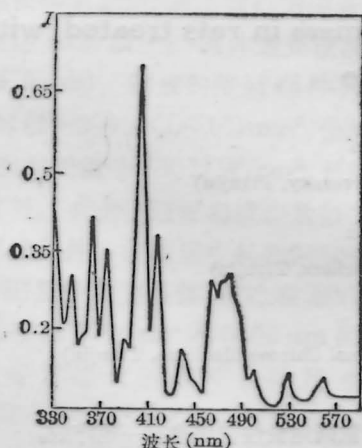


图 5 $\text{Na}_5\text{Sm}(\text{WO}_4)_4$ 晶体室温下的激发光谱

(上接第 90 页)



图 4 吸收率为 4×10^{-4} 的薄膜的光吸收动态信号张弛振荡的微区光程变化的过程。

本文所描述的方法, 可推广应用于更广泛的领域。本法是一种高灵敏、高衬度地检测微小光程变化的测量方法, 因而一切可以转化为微小光程变化的物理量, 都可以考虑用本法进行测量。特别重要的是, 若以可调谐激光束作为泵浦光束, 本文的装置可被

二者峰的位置完全对应。

由 $\text{Na}_5\text{Sm}(\text{WO}_4)_4$ 晶体的荧光光谱和激发光谱可以看到, 对应于 646 nm 的强荧光发射, 只要能找到适当的激发光源, 在 Sm^{3+} 的发光上能级 $4G_{5/2}$ 和下能级 $6H_{9/2}$ 之间实现粒子数反转分布是完全可能的。

本工作得到了我校晶体实验室陈葆梅、徐维民和结构分析中心程庭柱等同志的大力协助, 特此致谢。

参 考 文 献

- 1 黄金根, P. Porcker, 发光与显示, **4**, 11(1984)
- 2 M. V. Mokhosoev et al., Zhur. Neorg. Khim., **14**, 596(1969)
- 3 V. N. Karlov, E. Ya. Role, Zhur. Neorg. Khim., **16**, 1713(1971)
- 4 L. M. Kovba et al., Dokl. Akad. Nauk SSSR, **175**, 1290(1967)
- 5 V. A. Efremov et al., Kristallografiya, **25**, 254(1980)
- 6 V. K. Trunov et al., Zhur. Neorg. Khim., **23**, 2645(1978)
- 7 H. Y. -P. Hong and K. Dwight, Mat. Res. Bull., **9**, 775(1974)
- 8 S. R. Chian and H. Y. -P. Hong, Opt. Commun., **18**, 87(1976)
- 9 潘峻, 人工晶体, **16**, 15(1987)
- 10 张克从, 张乐德主编, 晶体生长(科学出版社, 北京, 1981)

(收稿日期: 1987年11月15日)

用于测量薄膜或表面样品的高灵敏度激光光谱测量。

范正修同志为本文提供测量样品, 并进行十分有益的讨论, 深表谢意。

参 考 文 献

- 1 R. L. Swofford and J. A. Morrell, J. Appl. Phys., **49**, 3667(1978)
- 2 D. M. Friedrich, in "Ultrasensitive Laser Spectroscopy", edited by D. S. Kligler (Academic Press, New York, 1983), pp. 311~342
- 3 A. C. Tam, in "Ultrasensitive Laser Spectroscopy", edited by D. S. Kligler, Academic Press, New York, 1983, pp. 1~108
- 4 徐毓光 et al., 光学学报(待发表)