

光学薄膜热膨胀系数的研究

吴周令 范正修

(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提 要

光热位移偏转技术结合横向光热偏转技术可用于研究薄膜样品的热膨胀系数。本文以 SiO_2 、 TiO_2 、 ZrO_2 、 MgF_2 、 ThF_4 等单层光学薄膜为例。报道相关的实验方法及实验结果。

关键词: 光热偏转技术; 光学薄膜的热膨胀系数。

一、引 言

随着高功率激光技术的发展, 光学薄膜的强激光损伤研究越来越引人注目。相关工作的深入进行, 需要精确了解光学薄膜的热物理性能, 如热导率、热膨胀系数等^[1,2]。本文针对这一情况, 首次提出用光热位移偏转技术^[3,4]结合横向光热偏转技术^[5~8]研究光学薄膜的热膨胀系数, 结果表明:

(1) 对吸收率 $A=10^{-4}\sim 10^{-3}$ 量级的光学薄膜, 本方法的热膨胀系数检测灵敏度为 $\alpha_{\text{th-film}}=10^{-8}\sim 10^{-9}\text{deg}^{-1}$;

(2) 光学薄膜热膨胀系数在有些情况下与相应块状材料有显著差异, 例如: 对 ThF_4 , $\alpha_{\text{th-film}}=2.6\times 10^{-6}\text{deg}^{-1}$, $\alpha_{\text{th-bulk}}=-2.5\times 10^{-6}\text{deg}^{-1}$; 对 TiO_2 , $\alpha_{\text{th-film}}=2.2\times 10^{-6}\text{deg}^{-1}$, $\alpha_{\text{th-bulk}}=(7\sim 9)\times 10^{-6}\text{deg}^{-1}$ 。

文中描述了实验装置, 给出了简要的理论分析和相应的原理性实验, 并对结果作了分析讨论。

二、基本 原理

光热位移偏转技术是 M. A. Olmstead 等人^[3]于 1983 年首次提出的一种新型热波探测技术。其基本原理如图 1 所示。样品受强度调制的激光束(泵浦光束)照射时, 光吸收的存在将在样品内部产生热波, 从而使其表面发生周期性形变, 当另一束激光束(探测光束)入射这一形变区域时, 其反射光方向将发生相应的周期性偏转。使用象限探测器可探测这一偏转, 分析所得结果即可获得关于样品的信息。

横向光热偏转技术最早由 A. O. Boccara 等人^[5]于 1980 年提出, 其基本原理如图 2 所示。与光热位移偏转技术不同的是, 这里引起探测光束发生偏转的原因, 是样品表面邻近介质内的梯度折射率效应。

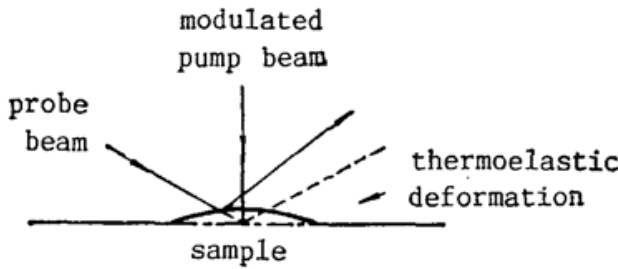


Fig. 1 Geometry of photothermal displacement optical beam deflection technique

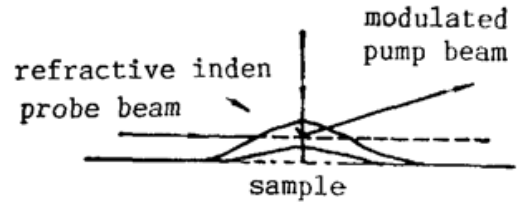


Fig. 2 Geometry of transverse photothermal optical beam deflection technique

用光热位移偏转技术结合横向光热偏转技术测光学薄膜热膨胀系数的基本原理如下：
 光学薄膜在较低调制频率下属于所谓热薄试样^[7] ($l < \mu_s < \mu_a$, 式中 l 为样品厚度, 通常为几千 Å 量级; μ_s 为样品热扩散长度, 在调制频率 $f = 120$ Hz 时为几十至几百 μm 量级; μ_a 为光吸收长度), 在这种情况下, 光热位移偏转信号 S_1 ^[3, 4] 与横向光热偏转信号 S_2 ^[5~8] 分别满足:

$$S_1 = C_1 \alpha_{th} \alpha l P (1 - R) \quad (1)$$

$$S_2 = C_2 \alpha l P (1 - R) \quad (2)$$

式中: C_1, C_2 ——实验常数, 决定于样品周围介质(本文中为空气和薄膜基底)、探测光路径、泵浦光束束腰尺寸以及象限探测器输出响应函数等实验条件; α_{th} ——样品热膨胀系数; α ——样品光吸收长度; l ——样品厚度; P ——泵浦光入射功率; R ——样品反射率。

把(1)、(2)两式相除, 得

$$\frac{S_1}{S_2} = \frac{C_1}{C_2} \alpha_{th} \quad (3)$$

记 $S \equiv \frac{S_1}{S_2}$, $C \equiv \frac{C_1}{C_2}$, 则有:

$$S = C \alpha_{th} \quad (4)$$

式中 C 为实验参数, 在样品基底和实验条件都不变的情况下为一常数。

由(4)式可以看出, 对于光学薄膜样品, 在热薄近似条件下, 其光热位移偏转信号与横向光热偏转信号的比值 S 正比于样品热膨胀系数 α_{th} , 这就是我们用光热位移偏转技术结合横向光热偏转技术研究光学薄膜热膨胀系数的基本依据。

实验中为获得样品热膨胀系数的绝对值, 原则上可用二种方法对实验系统进行定标: 其一, 通过理论计算获得 C 值, 实现系统的绝对定标; 其二, 以热膨胀系数已知的样品为定标样品, 对实验系统作相对定标。

考虑到精确计算 C 值需要精确了解样品基底特性及各种实验参数, 本研究选取第二种定标方案, 以热膨胀系数已知的 MgF_2 样品为定标样品进行相对定标, 其原理: 只要基底相同并且测量中保证实验条件不变, 则(4)式对定标样品同样适用, 故有:

$$S_c = C \alpha_{th-c} \quad (5)$$

把(4)、(5)两式相除并整理可得:

$$\alpha_{th} = \left(\frac{S}{S_c} \right) \alpha_{th-c} \quad (6)$$

式中 S_c 为定标样品光热位移偏转信号与横向光热偏转信号的比值, α_{th-c} 为定标样品的热膨

胀系数,对于热蒸发 MgF_2 薄膜,其值取自于文献[1]。

三、实验和结果

1. 实验装置

实验装置如图 3 所示。泵浦光束 A (He-Ne 激光, $\lambda = 6328 \text{ \AA}$, 最大输出功率 120 mW, 经斩波器 1 后由反射镜 2、3 确定方向, 然后经透镜 4 聚焦并入射至样品 5 的表面。B 为探测光束 (He-Ne 激光, $\lambda = 6328 \text{ \AA}$, 最大输出功率 2mW), 它经分束镜 6 后分成二束, 一束经透镜 7 聚焦后从样品表面掠过, 用于探测贴近样品表面的空气薄层内光热梯度折射率效应 (横向光热偏转技术); 另一束经反射镜 9 后由透镜 10 聚焦至样品表面, 用于探测样品表面的光热变形 (光热位移偏转技术)。图中 8 与 11 为象限探测器, 用于接收探测光束的角度偏转并输入锁相放大器进行相关检测; 12 为分束镜, 分出的激光束为功率计 13 所接收, 用于监测泵浦光束的功率漂移。

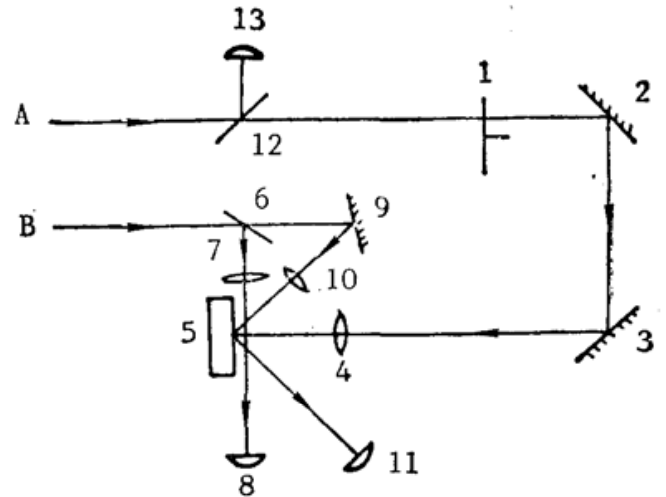


Fig. 3 Experimental setup of photothermal optical beam deflection technique

2. 实验结果

实验中用图 3 所示的实验装置测量了几种单层光学薄膜在室温条件下的热膨胀系数 $\alpha_{th-film}$, 结果及其与文献报道值、相应块状材料值的比较列于表 1。

Table 1 Measured thermal expansion coefficients of several single-layer optical coatings and their comparison with those of previous work and related bulk materials

Material	Film Thickness	$\alpha_{th-film} (\text{deg}^{-1})$		$\alpha_{th-bulk} (\text{deg}^{-1})^{[1]}$
		Our Results	Previous Data ^[1]	
SiO_2	$n\lambda = \lambda_0$ $\lambda_0 = 6328 \text{ \AA}$	0.64×10^{-6}	0.70×10^{-6}	0.55×10^{-6}
TiO_2		2.2×10^{-6}	2.1×10^{-6}	$7 \sim 9 \times 10^{-6}$
ZrO_2		2.8×10^{-6}	1.1×10^{-6}	4.2×10^{-6}
ThF_4		2.6×10^{-6}	2.9×10^{-6}	-2.5×10^{-6}

由表 1 可以看出:

(1) 除结构稳定性较差的 ZrO_2 单层膜外, 本文实验结果与文献报道值符合良好, 说明了用光热位移偏转技术结合横向光热偏转技术研究光学薄膜热膨胀系数的可行性;

(2) 除 SiO_2 单层膜外, 所有被测光学薄膜样品的热膨胀系数都与相应块状材料有显著差异。造成这种显著差异的可能原因是: 材料热蒸发成膜后结构有了较大的变化。

四、几点讨论

1. 关于本实验系统的重复精度

实验中我们以 TiO_2 膜为例进行了 10 次重复测量, 算得其热膨胀系数平均值为 $2.2 \times 10^{-6} \text{ deg}^{-1}$, 最大偏差为 $0.3 \times 10^{-6} \text{ deg}^{-1}$, 相当于优于 14% 的重复精度。

2. 关于本实验系统的适用范围

(1) 样品厚度上的限制:

由于热薄近似的应用, 本实验系统用于热膨胀系数的测量, 目前仅适于热薄试样 ($l \ll 10 \sim 100 \mu\text{m}$)^[7]。

(2) 样品光吸收上的限制:

受横向光热偏转技术弱吸收检测灵敏度的限制^[8], 本实验系统目前仅适于吸收率 $A \geq 10^{-5}$ 量级的薄膜试样。

(3) 系统用于测量热膨胀系数时的检测灵敏度:

在上述限制 2 满足的条件下, 系统检测灵敏度主要取决于光热位移偏转技术。实验中对 SiO_2 样品 ($A \sim 10^{-4}$, $\alpha_{\text{th}} \lesssim 10^{-6}$, $A \cdot \alpha_{\text{th}} \lesssim 10^{-10}$) 所得光热位移偏转信号为 $S_1 = 0.2 \text{ mV} / 2.53 \text{ V}$, 此时挡住泵浦光束, 测得 $S_{\text{1noise}} \lesssim 1 \mu\text{V} / 2.53 \text{ V}$, 此即为光热位移偏转技术的总噪声有效益。由上述结果可以推算该实验系统的检测限为 $(A \cdot \alpha_{\text{th}})_{\text{min}} \sim 10^{-12}$, 从而: 对吸收率 $A = 10^{-4} \sim 10^{-3}$ 量级的光学薄膜, 本实验系统热膨胀系数检测灵敏度为 $\alpha_{\text{th-film}} = 10^{-8} \sim 10^{-9} \text{ deg}^{-1}$ 。

五、结 束 语

用简单的超高灵敏的光热偏转技术研究了几种常见光学薄膜的热膨胀系数, 其结果与文献报道值相符, 说明了该方法的可行性。

系统检测灵敏度达 $\alpha_{\text{th-film}} = 10^{-8} \sim 10^{-9} \text{ deg}^{-1}$ (当 $A = 10^{-4} \sim 10^{-3}$ 量级时), 重复精度优于 14% 已可满足一般光学薄膜的使用要求。

作者感谢唐晋发教授与施柏焯老师在整个工作过程中的有益帮助和讨论, 感谢王之江教授对本工作的关怀和指导。

参 考 文 献

- [1] M. L. Scott; *NBS Special Publication*, 1985, **688**, 329.
[2] H. E. Pennett *et al.*; *Appl. Opt.*, 1987, **26**, No. 5 (Mar), 813.
[3] M. A. Olmstead *et al.*; *Appl. Phys. A.*, 1983, **32**, No. 3 (Mar), 141.
[4] T. Sawada *et al.*; «*Photoacoustic and Thermal Wave Phenomena in Semiconductors*», Ed. by A. Mandelis, (Elsevier Science Publishing Co., Inc., New York, 1987), 5.
[5] A. C. Boccara *et al.*; *Opt. Lett.*, 1980, **5**, No. 9 (Sep), 377.
[6] W. B. Jackson *et al.*; *Appl. Opt.*, 1981, **20**, No. 8(Apr), 1333.
[7] J. C. Murphy *et al.*; *J. Appl. Phys.*, 1980, **51**, No. 9 (Sep), 4580.
[8] 吴周令等;《光学学报》,1988, **8**, No. 11 (Nov), 1044.

Measurement of thermal expansion coefficients of optical thin films

WU ZHOULING AND FAN ZHENGXIU

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

(Received 3 September 1988; revised 23 June 1989)

Abstract

Thermal expansion coefficients of optical thin films can be measured by means of the combination of photothermal displacement optical beam deflection technique and transverse photothermal deflection technique. In this paper, single layers of SiO_2 , TiO_2 , ZrO_2 , MgF_2 and ThF_4 are taken as examples to show the experimental methods and results.

Key words: photothermal deflection; thermal expansion coefficients of thin films.