

双层材料光热偏转光谱的定量研究*

王 可 赵理曾 聂玉昕

(中国科学院物理研究所, 北京 100080)

提 要

从三维传热方程出发, 给出了双层材料的光热偏转光谱的理论模型, 讨论了光热偏转信号的特征及其在扫描成像应用中的意义。

关键词 光热偏转光谱。

1 引 言

光热偏转光谱(PTDS)是一种基于介质吸收光能引起折射率变化效应的实验方法, 它可以用于检测样品的光学、热学性质, 并能够发展为反映非均匀样品光学、热学结构的扫描显微成像技术。

文献[1]~[4]给出了在PTDS领域内的基础研究工作, 对于在实际应用中(尤其是成像应用中)普遍遇到的具有双层结构的样品的PTDS理论研究尚未见报道, 本文首先从一种简化的双层系统模型出发推出了样品的三维温度分布, 并由此计算了各种实验配置下的PTDS信号强度, 然后通过数值分析研究了谱的特征及其在扫描成像应用中的意义。

2 原 理

PTDS的物理机制是: 当一束强光($I \sim 10^3 \text{ W/cm}^2$)通过光吸收介质时, 其能量的一部分转化为热能, 在被加热区域引起折射率的变化, 由于热扩散作用, 这种变化延伸到通光区域以外和邻近的非光吸收介质内, 使一束探测光通过样品或邻近样品的一定区域, 它的偏转(决定于光束通过的路径上的折射率梯度)即和介质相应区域内的光吸收和热学性质联系起来。PTDS的理论分为以下两个部分:

2.1 温度分布

为简单起见, 考虑由图1所示在加热光束径向无限延伸的双层样品的情况。由于经过聚焦的激光光斑直径一般都小于样品的热扩散长度, 而对于实际有用的斩波频率, 样品材料的热扩散长度远小于样品尺度, 所以这种简化不会对计算结果发生显著的影响。图1中0区域和3区域是非光吸收介质, 下面的推导中设为空气, 区域1和2分别是覆层(镀膜)和衬底(基片), 厚度分别为 l_1 、 l_2 。光束加热介质引起的温度变化 T 满足下面方程

收稿日期: 1991年6月13日; 收到修改稿日期: 1991年9月9日

* 国家自然科学基金资助的项目。

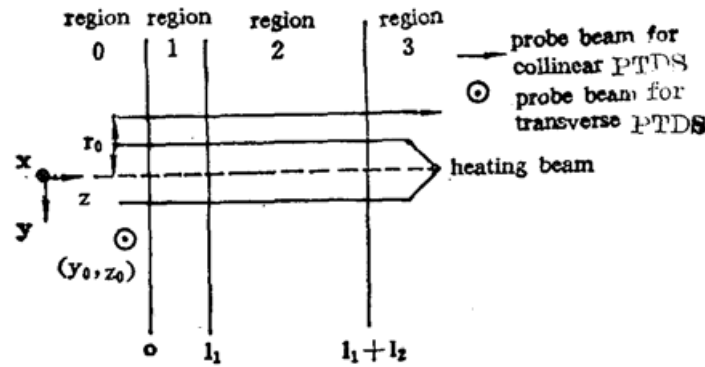


Fig. 1 Geometry for theory. The collinear PTDS probe beam is parallel to the heating beam and impinges onto the sample surface at a distance r_0 from the center of the heating beam; while the transverse PTDS probe beam is parallel to the sample surface with a transverse offset y_0 and longitudinal offset z_0

$$\left. \begin{aligned} \nabla^2 T_0 - \frac{1}{D_0} \frac{\partial}{\partial t} T_0 &= 0, & \nabla^2 T_1 - \frac{1}{D_1} \frac{\partial}{\partial t} T_1 &= -\frac{1}{K_1} Q_1, \\ \nabla^2 T_2 - \frac{1}{D_2} \frac{\partial}{\partial t} T_2 &= -\frac{1}{K_2} Q_2, & \nabla^2 T_3 - \frac{1}{D_0} \frac{\partial}{\partial t} T_3 &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

以及由温度和热流连续所规定的边界条件

$$\left. \begin{aligned} T_0|_{z=0} &= T_1|_{z=0} & K_0 \frac{\partial T_0}{\partial z} \Big|_{z=0} &= K_1 \frac{\partial T_1}{\partial z} \Big|_{z=0} \\ T_1|_{z=l_1} &= T_2|_{z=l_1} & K_1 \frac{\partial T_1}{\partial z} \Big|_{z=l_1} &= K_2 \frac{\partial T_2}{\partial z} \Big|_{z=l_1} \\ T_2|_{z=l_1+l_2} &= T_3|_{z=l_1+l_2} & K_2 \frac{\partial T_2}{\partial z} \Big|_{z=l_1+l_2} &= K_0 \frac{\partial T_3}{\partial z} \Big|_{z=l_1+l_2} \end{aligned} \right\} \quad (1)'$$

式中 D_i 是热扩散系数, K_i 是热传导系数 ($i=0, 1, 2, 3$) 对于经强度调制的高斯型加热光束, 方程(1)的热源项中频率为 ω 的傅氏分量为

$$\left. \begin{aligned} Q_1 &= (1-R_1) \frac{I_0}{2} \alpha_1 \exp\left[-\frac{2r^2}{a^2} - \alpha_1 z\right] \exp(i\omega t) + \text{c.c.} \\ Q_2 &= (1-R_1)(1-R_2) \frac{I_0}{2} \exp(-\alpha_1 l_1) \alpha_2 \exp\left[-\frac{2r^2}{a^2} - \alpha_2 z\right] \exp(i\omega t) + \text{c.c.} \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

式中 R_1, R_2 是界面光反射率, α_1, α_2 是吸收系数, a 是光束的 $\frac{1}{e^2}$ 强度半径, I_0 为平均入射光强, ω 为调制角频率。

根据(2)式, 假定各区域内的温度解具有 $T_i(\mathbf{r}, t) = \phi_i(\mathbf{r}) e^{i\omega t} + \text{c.c.}$ 的形式, 代入(1)式得 $\phi_i(\mathbf{r})$ 满足的方程

$$\left. \begin{aligned} \nabla \phi_0 - \frac{i\omega}{D_0} \phi_0 &= 0, & \nabla \phi_1 - \frac{i\omega}{D_1} \phi_1 &= -\frac{q_1}{K_1} \exp\left(-\frac{2r^2}{a^2} - \alpha_1 z\right), \\ \nabla \phi_2 - \frac{i\omega}{D_2} \phi_2 &= -\frac{q_2}{K_2} \exp\left(-\frac{2r^2}{a^2} - \alpha_2 z\right), & \nabla \phi_3 - \frac{i\omega}{D_0} \phi_3 &= 0. \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

式中 $q_1 = (1-R_1) I_0 \alpha_1 / 2$, $q_2 = (1-R_1)(1-R_2) \exp(-\alpha_1 l_1) I_0 \alpha_2 / 2$, 方程(3)的积分形式的解为

$$\left. \begin{aligned} \phi_0 &= \int_0^\infty \delta A(\delta) \exp(\beta_0 z) J_0(\delta r) d\delta, \\ \phi_1 &= \int_0^\infty \delta [C(\delta) \exp(\beta_1 z) + D(\delta) \exp(-\beta_1 z) + S_1(\delta) \exp(-\alpha_1 z)] J_0(\delta r) d\delta, \\ \phi_2 &= \int_0^\infty \delta [E(\delta) \exp(\beta_2 z) + F(\delta) \exp(-\beta_2 z) + S_2(\delta) \exp(-\alpha_2 z)] J_0(\delta r) d\delta, \\ \phi_3 &= \int_0^\infty \delta B(\delta) \exp[-\beta_0(z-l_1-l_2)] J_0(\delta r) d\delta. \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

式中 J_0 为第一类零阶 Bessel 函数,

$$\beta_i^2 = \delta^2 + \frac{i\omega}{D_i}, \quad S_i(\delta) = q_i h(\delta) / K_i / (\beta_i^2 - \alpha_i^2),$$

$$h(\delta) = a^2 \exp\left[-\frac{(a\delta)^2}{8}\right] / 4, \text{ 是 } e^{-\frac{2r^2}{a^2}} \text{ 的反 Hankel 变换,}$$

$$h(\delta) = \int_0^\infty r \exp\left(-\frac{2r^2}{a^2}\right) J_0(\delta r) dr.$$

(4) 式中的未知量 $A(\delta)$, $C(\delta)$, $D(\delta)$, $E(\delta)$, $F(\delta)$ 和 $B(\delta)$ 可由边界条件定出. 由 (1)' 式, 它们是下面线性方程组的解:

$$M(K_{0,1,2}; \beta_{0,1,2}; l_{1,2}) X = S(K_{1,2}; \beta_{1,2}; \alpha_{1,2}; q_{1,2}; a)$$

$$X = \begin{bmatrix} A(\delta) \\ C(\delta) \\ D(\delta) \\ E(\delta) \\ F(\delta) \\ B(\delta) \end{bmatrix}; \quad S = \begin{bmatrix} S_1(\delta) \\ S_2(\delta) - S_1(\delta) \exp(-\alpha_1 l_1) \\ 0 \\ -K_1 S_1(\delta) \alpha_1 \\ -K_2 S_2(\delta) \alpha_2 + K_1 S_1(\delta) \alpha_1 \exp(-\alpha_1 l_1) \\ 0 \end{bmatrix};$$

$$M = \begin{bmatrix} 1 & 0 & -e^{-\beta_1 l_1} & -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & e^{-\beta_1 l_1} & -e^{-\beta_1 l_1} & -1 \\ K_0 \beta_0 & 0 & -K_1 \beta_1 e^{-\beta_1 l_1} & K_1 \beta_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & K_1 \beta_1 & -K_1 \beta_1 e^{-\beta_1 l_1} & -K_2 \beta_2 e^{-\beta_1 l_1} & K_2 \beta_2 \\ 0 & K_0 \beta_0 & 0 & 0 & K_2 \beta_2 & -K_2 \beta_2 e^{-\beta_1 l_1} \end{bmatrix}.$$

至此, 可以得到四个区域内的温度分布:

$$\left. \begin{aligned} T_0(r, t) &= \exp(i\omega t) \int_0^\infty \delta A(\delta) \exp(\beta_0 z) J_0(\delta r) d\delta + \text{c.c.} \\ T_1(r, t) &= \exp(i\omega t) \int_0^\infty \delta [C(\delta) \exp(\beta_1 z) + D(\delta) \exp(-\beta_1 z) \\ &\quad + S_1(\delta) \exp(-\alpha_1 z)] J_0(\delta r) d\delta + \text{c.c.} \\ T_2(r, t) &= \exp(i\omega t) \int_0^\infty \delta [E(\delta) \exp(\beta_2 z) + F(\delta) \exp(-\beta_2 z) \\ &\quad + S_2(\delta) \exp(-\alpha_2 z)] J_0(\delta r) d\delta + \text{c.c.} \\ T_3(r, t) &= \exp(i\omega t) \int_0^\infty \delta B(\delta) \exp[-\beta_0(z-l_1-l_2)] J_0(\delta r) d\delta + \text{c.c.} \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

以上积分的物理意义是: 光束加热介质引起的温度变化是无穷多个独立 Bessel 分量的叠加, 所有分量具有相同的形式, 包括正向传播的热波, 反向传播的热波和源项, 在无吸收区域内只有沿 z 方向或 $-z$ 方向衰减的热波(0, 3 区域).

2.2 光束偏转的解

介质折射率的变化来源于介质内温度变化和热应力, 在一般的 PTDS 实验条件下, 热应力的影响可以忽略^[3], 于是折射率仅为温度的函数:

$$n(\mathbf{r}, t) = n_0 + \left. \frac{\partial n}{\partial T} \right|_{\text{ambient}} \cdot T(\mathbf{r}, t) \quad (7)$$

式中 n_0 为周围温度下的折射率, $\frac{\partial n}{\partial T}$ 是介质折射率的温度系数. 几何光束在折射率非均匀介质中传播时发生的偏转由下式决定^[4]:

$$\frac{d\mathbf{e}_r}{ds} = \frac{1}{n_0} \nabla_{\perp} n(\mathbf{r}, t), \quad (8)$$

式中 \mathbf{e}_r 是光束传播方向上的单位矢量, s 是光束路径长度, $\nabla_{\perp} n$ 是垂直于光传播方向的平面内的折射率梯度, 见图 2.

偏转角 ϕ 通常很小, 典型值为 10^{-5} rad/cm, 所以 $\phi \approx |\Delta\mathbf{e}_r|$. 对(8)式积分得

$$\Delta\mathbf{e}_r = \frac{1}{n_0} \int_{\text{Path}} \nabla_{\perp} n(\mathbf{r}, t) ds. \quad (9)$$

根据加热光束与探测光束的不同配置, PTDS 实验有图 1 所示共线和横向两种类型. 下面由(9)式分别给出两种情况下的光束偏转表达式.

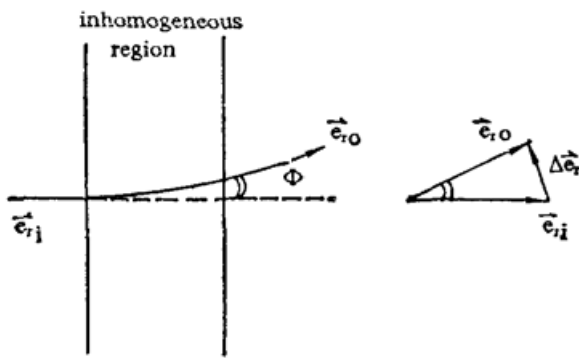


Fig. 2 Light beam deflection in medium with inhomogeneous refractive index

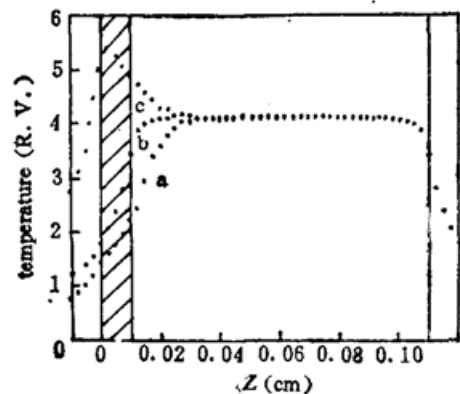


Fig. 3 Longitudinal temperature distribution for three types of samples

(a) substrate coated with silica (b) substrate only (c) substrate coated with glass

1) 对于共线 PTDS, 光束被所有 4 个区域内的折射率梯度偏折, 但是由于气体具有很低的 $\frac{\partial n}{\partial T}$ 值, 而且温度变化在 0 和 3 区域迅速衰减为零(见图 3), 所以只计及 1 区和 2 区的贡献:

$$\begin{aligned} \phi(r_0) = & -\frac{1}{n_0} \frac{\partial n}{\partial T} \exp(i\omega t) \int_0^{\infty} \delta^2 J_1(\delta r_0) d\delta \left[\frac{C}{\beta_1} (e^{\beta_1 l_1} - 1) - \frac{D}{\beta_1} (e^{-\beta_1 l_1} - 1) \right. \\ & \left. - \frac{S_1}{\alpha_1} (e^{-\alpha_1 l_1} - 1) + \frac{E}{\beta_2} e^{\beta_2 l_1} (e^{\beta_2 l_1} - 1) + \frac{F}{\beta_2} e^{-\beta_2 l_1} (e^{-\beta_2 l_1} - 1) \right] \end{aligned}$$

$$-\frac{S_2}{\alpha_2} e^{-\alpha_2 z_1} (e^{-\alpha_2 z_2} - 1)] + \text{c.c.} \quad (10)$$

2) 与共线的情况不同, 横向 PTDS 只涉及到一个区域(0 区)内的折射率梯度分布, 但是光束的偏转却有横向和纵向两个互相垂直的分量, 根据(9)式可以得到

$$\left. \begin{aligned} \phi_{\text{transverse}}(y_0, z_0) &= \frac{\partial n}{n_0 \partial T} \exp(i\omega t) \int_0^\infty \delta^2 A(\delta) \exp(\beta_0 z_0) d\delta \int_{y_0}^\infty dr J_1(\delta r) y_0 / \sqrt{r^2 - y_0^2} \\ \phi_{\text{longitudinal}}(y_0, z_0) &= \frac{\partial n}{n \partial T} \exp(i\omega t) \int_0^\infty \delta A(\delta) \exp(\beta_0 z_0) d\delta \int_{y_0}^\infty dr J_0(\delta r) r / \sqrt{r^2 - y_0^2} \end{aligned} \right\} (11)$$

3 数值结果和讨论

考虑三种类型的样品: *A* 为无吸收的覆层加有吸收的衬底, *B* 为有吸收的衬底, *C* 为有吸收的覆层+有吸收的衬底, 采用表 1 中的参数, 利用(6)、(10)和(11)式在不同条件下进行数值计算, 得到了图 3~8 所示的温度分布和光束偏转信号强度曲线, 下面解释各图的意义。

图 3 示出覆层的光学和热学性质对样品表层及相邻近的薄空气层的温度有重要影响。

由图 4 看出, 横向 PTDS(横向和纵向偏转)对覆层材料性质相当灵敏, 大吸收的材料升温, 使信号增强, 无吸收且热导大的材料降温, 使信号减弱。

Table 1 Values and parameters used in calculation

medium	$\alpha(\text{cm}^{-1})$	$K(\text{W/cmK})$	$D(\text{cm}^2/\text{s})$
air	0	2.6×10^{-4}	0.2
substrate	0.1	8.4×10^{-3}	5.13×10^{-3}
silica layer	0	1.34×10^{-2}	8.5×10^{-3}
glass layer	0.12	7.6×10^{-3}	4.9×10^{-3}

heating beam intensity $I_0 = 10^3 \text{W/cm}^2$, radius $a = 0.03 \text{cm}$; modulation frequency $\omega/2\pi = 10 \text{Hz}$

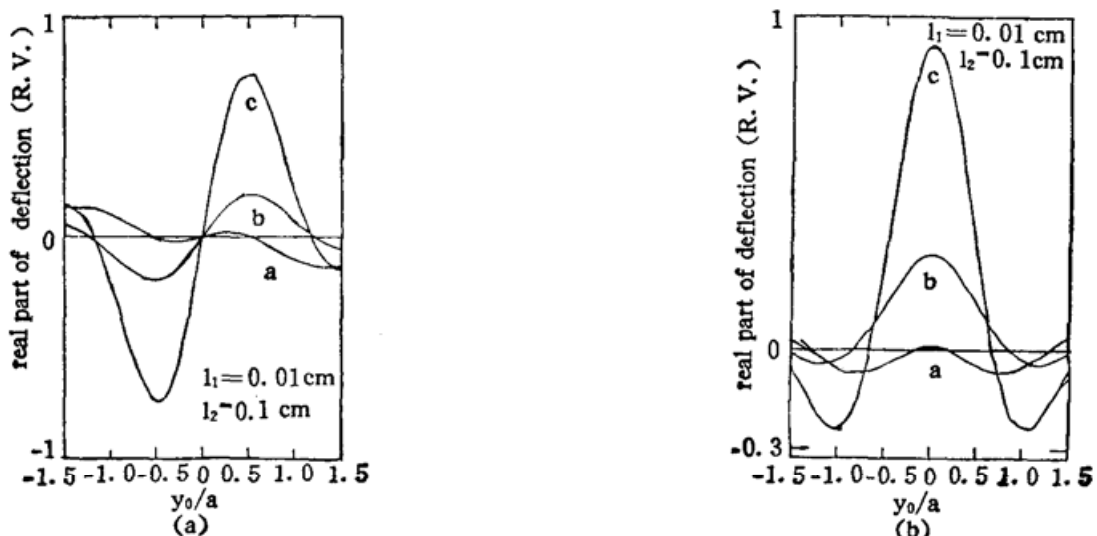


Fig. 4 Transverse PTDS for three types of samples

- (a) Dependence of the transverse component of deflection on transverse offset (b) Dependence of the longitudinal component of deflection on transverse offset

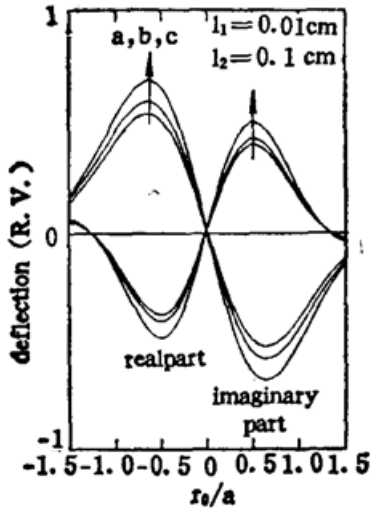


Fig. 5 Collinear PTDS for three types of samples. Dependence of the deflection on radial offset

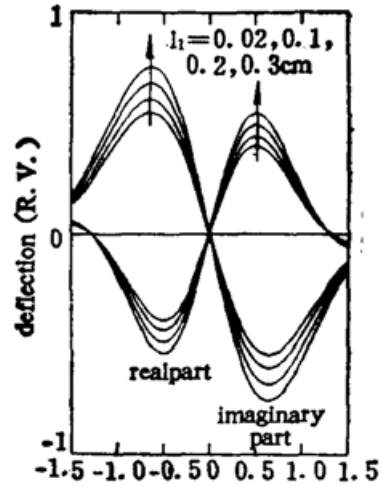


Fig. 6 Collinear PTDS for C samples with different coating thickness. Dependence of deflection on radial offset

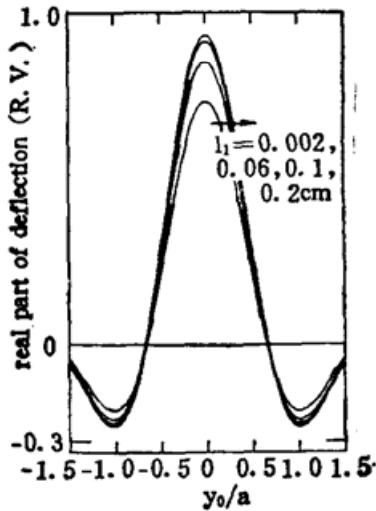


Fig. 7 Transverse PTDS for C samples with different coating thickness. Dependence of the longitudinal component of deflection on transverse offset

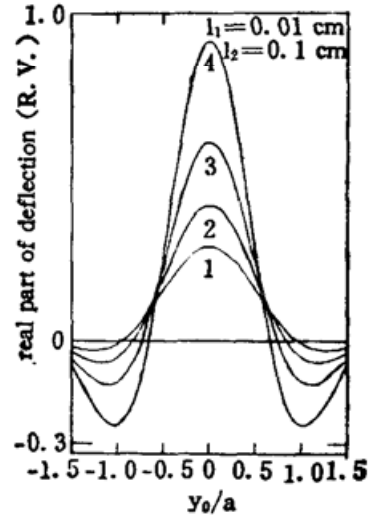


Fig. 8 Transverse PTDS with different longitudinal offsets. Dependence of the longitudinal component of deflection on transverse offset (1— $z_0 = -0.003$ cm, 2— $z_0 = -0.002$ cm, 3— $z_0 = -0.001$ cm, 4— $z_0 \rightarrow 0$)

图 5 给出共线 PTDS 也可以用来区分覆层材料的性质。由于总的偏转包括覆层和衬底两部分的贡献。从图 3 可知,衬底深部的温度分布受覆层影响不大,衬底深度对各种覆层材料造成的总偏转的贡献相近。所以用共线 PTDS 测量覆层性质宜使用薄衬底的样品。

图 6 指出共线 PTDS 信号与覆层厚度有关。在已知覆层性质的情况下,可用来测量其厚度(衬底要薄)。图 7 显示横向 PTDS 信号只与薄覆层厚度有关。当覆层厚度再增加时(如图中的 1 mm 厚度),信号已变化很小,即对增加的厚度很不灵敏,或者说信号饱和了。所以,横向 PTDS 信号不能用来测量厚覆层的厚度。

图 8 说明横向 PTDS 信号与探测束和样品表面的距离有关。如果使探测束和加热束相交,以交点为探针,可以得到表面形貌的信息。

以上分析的结论是: 利用 PTDS 的适当配置, 可以探测光学样品表面涂覆材料的性质和厚度(当然也可以检测单纯衬底薄片的性质和厚度). 一个直接的可能应用是通过构成一个计算机控制的二维扫描及数据采集分析系统, 对非均匀薄片样品进行结构成像, 详见表 2.

Table 2 Characteristics of the two PTDS signals and the prospects for their application

signal	affected by	fit to give information about
transverse PTDS	optical/thermal properties of surfaces of the samples; thickness of thin coatings	surface structure
	distance between sample surface and probe beam	topography of sample surface
collinear PTDS	optical/thermal properties and thickness of thick coatings (with substrate of known material)	surface structure within a depth
	thickness of the sample	bulk structure (thickness, defects, etc.)

作者感谢钱莹洁、金英淑、何秋英同志在数值计算中提供的帮助。

参 考 文 献

- [1] W. B. Jackson, N. M. Amer *et al.*, *Appl. Opt.*, 1981, **20** (7): 1333
- [2] L. C. Aamdodt, J. C. Murphy, *J. Appl. Phys.*, 1981, **52** (8): 4903
- [3] Y. X. Nie, Bertrand, *J. Appl. Phys.*, 1989, **65** (2): 438
- [4] L. W. Casperson, *Appl. Opt.*, 1973, **12** (10): 2434

A quantitative investigation of photothermal deflection spectroscopy for two-layer system

WANG KE ZHAO LIZENG NIE YUXIN

(*Institute of Physics, Academia Sinica, Beijing 100080*)

(Received 13 June 1991; revised 9 September 1991)

Abstract

A complete theoretical treatment of photothermal deflection spectroscopy (PTDS) for two-layer system samples is given. Characteristics of the optical beam deflection signals under various conditions are discussed in consideration of the scanning microscopic imaging application of PTDS.

Key words photothermal deflection spectroscopy, two-layer system.