

# 脉冲激光光热失调技术

郝宏刚<sup>1,2</sup> 李斌成<sup>1</sup> 刘明强<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup> 中国科学院光电技术研究所, 四川 成都 610209; <sup>2</sup> 中国科学院研究生院, 北京 100039)

**摘要** 将脉冲激光作为加热光引入光热失调测量技术中, 提出了脉冲激光光热失调测量技术, 介绍了其基本原理, 分析了脉冲激光光热失调测量技术用于测量光学薄膜微弱吸收的可行性。实验以 532 nm 的高反射光学薄膜为样品, 采用波长为 632.8 nm 的探测光, 研究了脉冲激光光热失调技术信号振幅的时间特性以及最大信号幅值与样品表面加热光能量密度、加热光斑与探测光斑相对位置的变化关系。研究表明, 光热信号随时间先增大后减小, 而随表面加热光能量密度的提高而增大, 当样品表面加热和探测光斑重合时光热信号最大。

**关键词** 光学薄膜; 脉冲激光; 光热失调; 微弱吸收

**中图分类号** O432.2 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS20082810.1942

## Pulsed Laser Photothermal Detuning Technique

Hao Honggang<sup>1,2</sup> Li Bincheng<sup>1</sup> Liu Mingqiang<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup> Institute of Optics and Electronics, Chinese Academy of Sciences, Chengdu, Sichuan 610209, China)  
<sup>2</sup> Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China)

**Abstract** A pulsed laser photothermal detuning technique, in which the temperature induced spectral shifts of optical coatings are used to measure photothermal signal, is presented. A theoretical model is developed to describe the pulsed laser photothermal detuning signal. The application to the absorption measurement of optical coatings is discussed. An experiment is performed with a highly reflective (HR) coating used in 532 nm. The amplitude and temporal behavior of the pulsed laser photothermal detuning are detected at 632.8 nm, and their dependences on the experimental parameters, such as the energy density of the excitation beam and the relative position between the excitation and probe beams on the sample surface are investigated. The results show that the detuning signal increases firstly and then decreases with the time, rises with the increase of the power density, and reaches the maximum at the position where the pump and probe beams are overlapped.

**Key words** optical coatings; pulsed laser; photothermal detuning; weak absorption

## 1 引 言

吸收损耗是衡量光学薄膜性能的重要指标之一, 薄膜吸收损耗的准确测量对优化膜层设计和镀膜工艺以降低吸收损耗十分重要。在高功率激光系统中, 高质量的光学薄膜元件吸收率已达  $10^{-6}$  量级甚至更小, 传统的分光光度法、消光系数法等已无法满足测量低吸收损耗(低于  $10^{-4}$ )的要求。目前, 激光量热法<sup>[1]</sup>、光热偏转技术<sup>[2]</sup>和表面热透镜技术<sup>[3, 4]</sup>等基于光热效应的方法是测量薄膜元件吸收损耗的有效方法, 测量灵敏度通常达到  $10^{-6} \sim 10^{-8}$

量级。但激光量热法的时间和空间分辨率低, 光热偏转技术和表面热透镜技术的实际调试比较繁琐, 同时, 测量的信号都依赖于光学元件因热膨胀产生的表面热变形或光学元件内部的折射率温度梯度, 这对于测量基底热膨胀系数或折射率温度系数小的薄膜样品是一种限制。

最近, Honggang Hao 等<sup>[5]</sup>提出一种测量光学薄膜元件吸收损耗的新方法——光热失调测量技术, 报道了强度周期性调制的连续激光作为加热光时的理论和实验结果, 证明了该方法的可行性。与

收稿日期: 2008-02-20; 收到修改稿日期: 2008-03-27

作者简介: 郝宏刚(1977—), 男, 博士研究生, 主要从事光热检测技术方面的研究。E-mail: haoluo1213@126.com

导师简介: 李斌成(1966—), 男, 研究员, 博士生导师, 主要从事光热技术和光学薄膜检测技术等方面的研究。

E-mail: beli@ioe.ac.cn

其他光热技术相比,该方法实验操作简便,可实现吸收损耗的二维高分辨率成像,并且在一定条件下可以提高吸收损耗测量灵敏度。本文在连续激光调制光热失调测量技术的基础上,改用脉冲激光作为加热光源,在理论和实验上研究了光热信号振幅的时间特性,分析了样品表面加热光能量密度以及加热光与探测光相对位置对信号幅值的影响。

## 2 理 论

当脉冲激光照射到光学薄膜样品上时,由于薄膜吸收激光能量使照射和邻近区域膜层内部温度上升,而后在脉冲间隔时间内由于热扩散效应温度缓慢下降。膜层温度的变化使膜层厚度和折射率发生改变,进而引起反射光谱带的漂移。使用一束探测激光监测薄膜元件在某一波长反射或透射光强度的实时变化来监视薄膜元件吸收损耗和光学性能,通过对信号幅值定标可以实现吸收损耗的绝对测量。如图 1(a)所示,实线和虚线分别为初始温度  $T_0$  和温度升高为  $T_0 + \Delta T$  ( $\Delta T$  为温度变化值)时的反射率  $R$ ,  $\lambda_1, \lambda_2$  分别为探测光波长和加热光波长。由图 1(b)可见,在光谱带边缘斜率较大的位置反射率的变化较大,  $\Delta R$  为温度  $T_0$  与  $T_0 + \Delta T$  时的反射率差,因此探测波长处于  $\lambda_1$  时可以灵敏地监测到光谱的漂移。实验中选择波长接近此最佳波长的激光器(气体或半导体激光器)作探测光源,然后通过改变探测光束的入射角使最佳探测波长刚好与探测激光器波长匹配,从而达到最优化测量灵敏度的目的<sup>[5]</sup>。

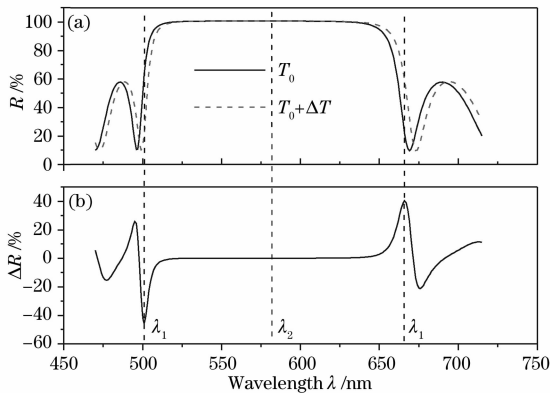


图 1 (a) 温度  $T_0$  和  $T_0 + \Delta T$  时的反射光谱, (b) 温度  $T_0$  与  $T_0 + \Delta T$  时的反射率差  $\Delta R$

Fig.1 (a) Reflectivity of a HR coating at temperatures  $T_0$  and  $T_0 + \Delta T$ , (b) difference between reflectivities at temperatures  $T_0$  and  $T_0 + \Delta T$

### 2.1 薄膜元件的反射率温度系数

为获得由温度变化引起的反射率变化,首先需要

计算出样品的反射率或透射率温度系数。实验采用的高反射光学薄膜样品结构为  $[\text{Air}/(\text{HL})^{10}\text{H}/\text{Sub}]$  的四分之一波长堆,采用电子束蒸发的方式镀制,高折射率材料为  $\text{TiO}_2$ ,低折射率材料为  $\text{SiO}_2$ ,衬底为熔融石英,厚度为 2.5 mm,对 532 nm 光波的反射率在 98% 以上。

利用分析窄带滤色片中心波长漂移问题中的高桥模型<sup>[6~9]</sup>,在温度  $T_0 + \Delta T$  时的膜层折射率和厚度分别为

$$n_i^T = n_i^0 + \left\{ \left( \frac{dn}{dT} \right)_i \Delta T + \left[ 1 - n_i^0 - \left( \frac{dn}{dT} \right)_i \Delta T \right] \times \left[ \frac{A_i \Delta T}{1 + (3\alpha_i + A_i) \Delta T} \right] \right\}, \quad (1)$$

$$d_i^T = d_i^0 [1 + (\alpha_i - B_i) \Delta T], \quad (2)$$

式中

$$A_i = \frac{2(1 - 2\nu_i)}{(1 - \nu_i)} (\alpha_s - \alpha_i),$$

$$B_i = \frac{2\nu_i}{(1 - \nu_i)} (\alpha_s - \alpha_i),$$

$n_i^0, d_i^0$  分别为膜层在初始温度  $T_0$  时的折射率与物理厚度,  $(dn/dT)_i$  为膜层的折射率温度系数,  $\alpha_i, \nu_i$  和  $\alpha_s$  分别为膜层材料的线性热膨胀系数、泊松比和基底材料的线性热膨胀系数<sup>[5,9~11]</sup>。

将温度  $T_0 + \Delta T$  时的膜层厚度  $d_i^T$  和折射率  $n_i^T$  代入光学薄膜各层的特征矩阵

$$\mathbf{M}_j = \begin{bmatrix} \cos \delta_j & \frac{i}{\eta_j} \sin \delta_j \\ i\eta_j \sin \delta_j & \cos \delta_j \end{bmatrix}, \quad (3)$$

式中  $j, \eta_j$  和  $\delta_j$  分别为层数、第  $j$  层的光学导纳和相位厚度,然后将各层的特征矩阵相乘求得光学膜系的反射率<sup>[12]</sup> 为

$$R(\lambda_1, T) = \left( \frac{N_0 B - C}{N_0 B + C} \right) \left( \frac{N_0 B - C}{N_0 B + C} \right)^*, \quad (4)$$

式中

$$\begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} = \prod_{j=1}^k \begin{bmatrix} \cos \delta_j & \frac{i}{\eta_j} \sin \delta_j \\ i\eta_j \sin \delta_j & \cos \delta_j \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 \\ N_b \end{bmatrix},$$

$N_0$  和  $N_b$  分别为空气和基底的光学导纳。由于膜层的厚度和折射率与温度有关,因此可以获得反射率与波长、入射角度和温度之间关系。对温度  $T$  求导即可以获得温度  $T_0$  时的薄膜元件反射率温度系数,可以写为

$$\frac{dR}{dT} = \left. \frac{\partial R(\lambda_1, T)}{\partial T} \right|_{T=T_0}. \quad (5)$$

如图 2 所示为波长 632.8 nm 的探测光在  $28^\circ$  入

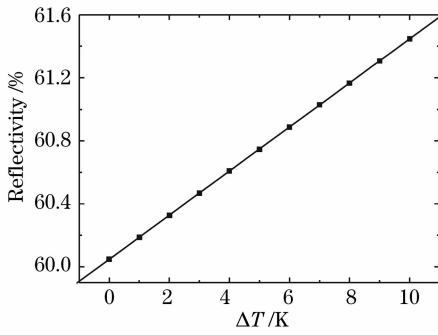


图 2 632.8 nm 处反射率随温度变化值的变化关系

Fig. 2 Relation between reflectivity and temperature variation at 632.8 nm

$$\Delta T(r, t) = C \int_0^{\infty} \delta J_0(\delta r) F \left\{ \frac{1 + \exp(2\delta L)}{\delta^2 [\exp(2\delta L) - 1]} - \sum_{k=0}^{\infty} C_k \exp[-D(\delta^2 + \eta_k^2)t] \right\} d\delta, \quad (6a)$$

脉冲照射结束后间隔时间内:  $\tau_1 < t \leq \tau$

$$\Delta T(r, t) = C \int_0^{\infty} \delta J_0(\delta r) F \left\{ \sum_{k=0}^{\infty} D_k \exp[-D(\delta^2 + \eta_k^2)(t - \tau_1)] \right\} d\delta, \quad (6b)$$

式中

$$C_k = \begin{cases} \frac{1}{(L\delta^3)}, & k = 0 \\ \frac{2}{L\delta(\delta^2 + \eta_k^2)}, & k = 1, 2, 3, \dots \end{cases}$$

$$D_k = C_k \{1 - \exp[-D(\delta^2 + \eta_k^2)\tau_1]\},$$

$$C = A_0 P / (2\pi K_{th}),$$

$$F = \delta \exp(-\delta^2 a^2 / 4),$$

$$\eta_k = k\pi / L, \quad k = 0, 1, 2, 3, \dots$$

$\tau_1$ 、 $\tau$  和  $L$  分别为脉冲宽度、脉冲周期和样品基底厚度,  $A_0$  为样品对加热光的吸收率,  $P$  和  $a$  分别为加热光的功率和  $(1/e^2)$  半径,  $r$  为探测光束和加热光束在样品表面的相对距离,  $J_0$  为第一类零阶贝塞尔函数,  $D$  和  $K_{th}$  分别为基底材料的热扩散系数和热导率。

在光热失调技术中, 由光谱漂移引起的光热信号正比于由温度引起的反射率或透射率的变化:

$$S = \frac{1}{R_0} \frac{dR}{dT} \Delta T(r, t) \propto \frac{1}{R_0} \frac{dR}{dT} A_0 P, \quad (7)$$

式中  $R_0$  为初始温度  $T_0$  时的反射率。从(7)式可见, 光热失调信号幅值与样品的吸收成正比, 因此, 该方法可以用来测量光学薄膜的吸收损耗。

## 3 实 验

### 3.1 实验装置

实验装置如图 3 所示。加热光束为灯泵脉冲激

射角度下, 由(4)式计算得到的实验中使用的 532 nm 反射镜反射率与温度变化值的关系。由图 2 可见, 在温度变化值较小的情况下, 反射率随温度的升高呈线性变化, 温度越高反射率越高。直线的斜率即为样品的反射率温度系数, 由线性拟合可以获得此时的反射率温度系数为  $1.41 \times 10^{-3} / K$ 。

### 2.2 光热失调信号

当加热光为强度呈高斯分布且重复频率较低(实验采用的光源重复频率为 10 Hz)的脉冲激光时, 样品表面的温度分布可以写为<sup>[13]</sup>: 脉冲照射时间内:  $0 < t \leq \tau_1$

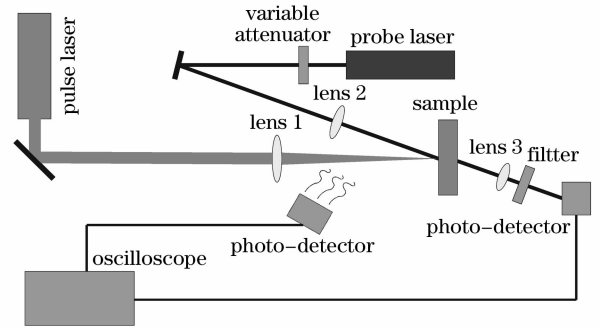


图 3 实验装置示意图

Fig. 3 Schematic diagram of experimental setup

光器(powerlite™ precision II 8000, Continuum)输出波长为 532 nm 的光束, 脉冲宽度约为 20 ns, 重复频率 10 Hz, 单脉冲能量约为 11 mJ。输出光束经透镜(焦距 180 mm)聚焦后照射到样品薄膜表面, 需仔细调节加热光聚焦透镜的位置, 在获得较大光热信号的前提下防止加热光对样品的损伤。加热光束在样品表面的光斑大小和位置可以通过调节聚焦透镜位置来改变。与连续激光调制光热失调法相比, 脉冲式光热失调法需要强度稳定性更高的探测光源和响应更快的光电探测器。实验中探测光束由氩氦激光器(05-STP-903, Melles Griot)提供, 工作波长 632.8 nm, 输出功率约为 1 mW。探测光束经光强衰减和透镜(焦距 120 mm)聚焦后以  $28^\circ$  的入射角从薄膜面照射样品, 其透射光经透镜(焦距 30 mm)

聚集到光电探测器(Models 1801, New Focus)的接收面上。光电探测器的输出信号送入数字存储示波器(TDS 2012, Tektronix)显示并存储光热信号幅度的时间变化曲线,数字示波器由另一接收 532 nm 脉冲光的光电探测器输出脉冲信号触发。

### 3.2 结果与讨论

为了实验方便,测量探测光透过光强的变化。如图 4 所示为光热失调信号随时间的变化曲线,黑色实线为实验结果,白色实线为理论结果。由于实验样品的透射率曲线随样品的温度变化值而向长波方向移动,透射率减小,所以实验测得的信号为负值。由图 4 可见,信号在很短的时间内达到最大值,然后缓慢地减小。信号的时间特性与样品的热性质有关,同时也与样品内部的热传导过程有关。在信号下降的时间段内,实验结果与理论值一致,理论值由(7)式计算获得。

实验通过调节加热光束聚焦透镜的横向(垂直加热光束传播方向)位置可以改变样品表面探测光斑和加热光斑的相对位置,进而影响到光热信号的大小。

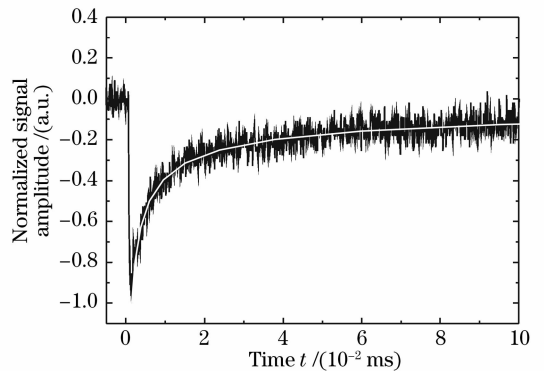
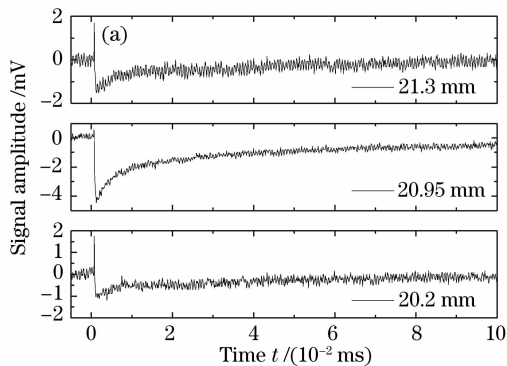


图 4 信号随时间变化的实验与理论对照

Fig. 4 Normalized experimental and theoretical photothermal signal versus time

图 5(a)为在聚焦透镜的三个不同横向位置时所获得的光热信号。可见当两光斑的相对位置不同时,光热信号最大值不同,从上到下三个不同位置时的最大值分别为 1.5 mV、4.5 mV 和 1.2 mV。图 5(b)为光热信号振幅的最大值与两光斑的相对位置之间的关系,点为实验值,实线为根据实验值所画的趋势线,可见当两光斑在样品表面重合时光热信号振幅最大。

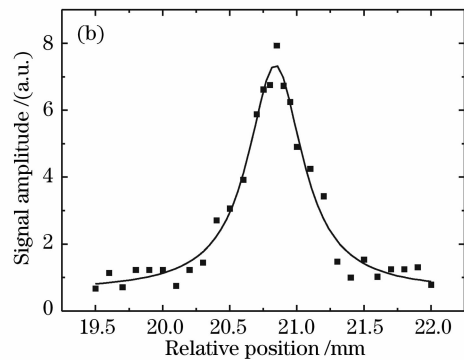


图 5 光热信号随透镜横向位置(a)和加热和探测光束相对位置(b)的变化关系

Fig. 5 Photothermal signal amplitude versus lens horizontal position (a) and the relative position between the pump and probe beams (b)

实验中通过调节加热光束聚焦透镜的纵向(沿加热光束传播方向)位置可以改变样品表面加热光斑的大小(注意不要使加热光斑太小而引起薄膜的损伤),进而改变样品表面上加热光的能量密度影响光热信号的大小。如图 6(a)所示为聚焦透镜在三个不同纵向位置时所获得的光热信号,可见,从上到下三个不同位置处光热信号的最大值分别为 2.0 mV、2.6 mV 和 4.7 mV。图 6(b)为光热信号振幅的最大值与聚焦透镜纵向位置之间的关系,横坐标表示透镜与样品间的距离,距离越大样品表面加热光能量密度越小,可见样品表面加热光的能量密度越大,光热信号越大。

需要说明的是,由于实验使用的脉冲激光光源光束质量较差,实际测试时,样品表面的激励光斑并非为理论计算中假定的理想高斯光斑,其强度分布较为复杂。图 4 所示的信号随时间的变化曲线与样品的热扩散过程直接相关,与激励光斑的尺寸相关,而与其光强的空间分布关系很小,所以理论和实验吻合较好。而图 5、图 6 的实验结果直接与激励光细微的强度分布相关,故未能和理论结果直接比较,但其变化趋势与理论结果定性一致。与其他光热技术一样,实现薄膜吸收的绝对测量需采用标准样品对测试系统进行定标。光热失调技术依赖于光谱带的漂移现象,情况较为复杂,其标准样品和测试样品

须具备相似的光谱性质、膜层材料和膜系结构等苛刻的条件,所以,此方法不宜实现绝对吸收的测量,但在相对吸收和面吸收的高分辨率成像等方面具有较大的应用前景。与连续激光调制光热失调法相比,由于脉冲激光可以在短时间内使膜层内部的温

度变化值更高,采用脉冲照射可以进一步提高测量光学薄膜吸收的灵敏度。另外,原理上脉冲式光热失调法可研究光学薄膜内部的快速热传导过程及预损伤过程等。

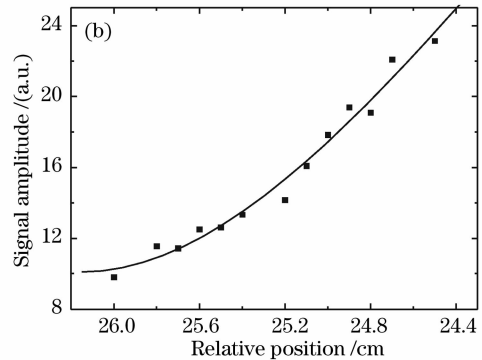
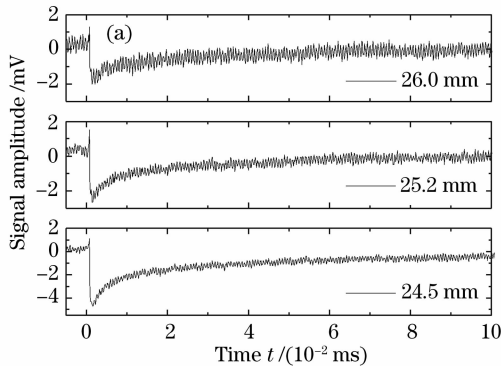


图 6 光热信号随透镜纵向位置(a)和透镜与样品间(b)的变化关系

Fig. 6 Photothermal signal amplitude versus lens vertical position (a) and relative position between lens and sample (b)

## 4 结 论

提出了脉冲激光光热失调技术,理论和实验分析结果表明,实验结果与理论定性一致。除了与探测光的入射角度有关外,光热信号随加热光能量密度提高而增大,当样品表面加热和探测光斑重合时光热信号最大。在保持较高灵敏度的同时,脉冲激光光热失调技术降低了实际测量光路调试的难度,可提高测量的空间分辨率。

致谢 感谢尚佳江、朱瑾和罗长春等提供的实验样品,感谢高丽峰和高卫东在实验中的帮助。

## 参 考 文 献

- 1 Li Bincheng, Xiong Shengming, Holger Blaschke *et al.*. Measuring weak absorbance of optical thin films with laser calorimetric technique[J]. *Chin. J. Lasers*, 2006, **33**(6): 823~826
- 2 李斌成,熊胜明, Holger Blaschke 等. 激光量热法测量光学薄膜微弱吸收[J]. *中国激光*, 2006, **33**(6): 823~826
- 3 L. Gallais, M. Commandré. Photothermal deflection in multilayer coatings: modeling and experiment[J]. *Appl. Opt.*, 2005, **44**(25): 5230~5238
- 4 B. Li, S. Martin, E. Welsch. In situ measurement on ultraviolet dielectric components by a pulsed top-hat beam thermal lens[J]. *Appl. Opt.*, 2000, **39**(25): 4690~4697
- 5 Bo Ling, Hongbo He, Jianda Shao. Effects of water vapor in high vacuum chamber on the properties of HfO<sub>2</sub> films[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2007, **5**(8): 487~489
- 6 Honggang Hao, Bincheng Li. Photothermal detuning for

absorption measurement of optical coatings[J]. *Appl. Opt.*, 2008, **47**(2): 188~194

- 6 Gu Peifu, Chen Haixing, Lu Wei *et al.*. Temperature stability of the central wavelength for WDM thin film bandpass filters[J]. *Acta Optica Sinica*, 2004, **24**(1): 33~36
- 7 顾培夫,陈海星,陆巍等. 波分复用薄膜带通滤光片的中心波长温度稳定性[J]. *光学学报*, 2004, **24**(1): 33~36
- 8 Cui Yun, Ma Mianjun, Xiong Yuqing *et al.*. Influence of temperature and humidity to the performance of narrow band filters[J]. *Vacuum & Cryogenics*, 2004, **10**(2): 75~84
- 9 崔云,马勉军,熊玉卿等. 温度和吸湿对窄带滤光片性能的影响[J]. *真空与低温*, 2004, **10**(2): 75~84
- 10 Haruo Takashashi. Temperature stability of thin-film narrow-bandpass filters produced by ion-assisted deposition[J]. *Appl. Opt.*, 1995, **34**(4): 667~675
- 11 Sung-Hwa Kim, Chang Kwon Hwanbo. Derivation of the center-wavelength shift of narrow-bandpass filters under temperature change[J]. *Opt. Exp.*, 2004, **12**(23): 5634~5639
- 12 Guo Tuan, Zhao Qida, Liu Lihui *et al.*. Light intensity-referred and temperature-insensitive fiber Bragg grating dynamic pressure sensor[J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(2): 207~211
- 13 郭团,赵启大,刘丽辉等. 光强检测型光纤光栅温度不敏感动态压力传感器研究[J]. 2007, **27**(2): 207~211
- 14 E. Drouard, P. Huguet-Chantôme, L. Escoubas *et al.*.  $\partial n/\partial T$  Measurements performed with guided waves and their application to the temperature sensitivity of wavelength-division multiplexing filters[J]. *Appl. Opt.*, 2002, **41**(16): 3132~3136
- 15 Lu Jinjun, Liu Weiguo. *Technique of Optical Thin Film* [M]. Shanxi: Northwestern Polytechnical University Press, 2005. 9~10
- 16 卢进军,刘卫国. 光学薄膜技术[M]. 陕西:西北工业大学出版社, 2005. 9~10
- 17 Mingqiang Liu, Bincheng Li, Honggang Hao. Comparison of signals under top-hat and Gaussian beam excitations in surface thermal lens technique[C]. *Proc. SPIE*, 2007, **6834**: 68342D-1~11