

文章编号: 0253-2239(2010)02-0609-04

# 基于表面热透镜的薄膜弱吸收测量的调制频率研究

陶春先<sup>1,2</sup> 李霞<sup>1</sup> 李大伟<sup>1</sup> 贺洪波<sup>1</sup> 邵建达<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800; <sup>2</sup> 中国科学院研究生院, 北京 100049)

**摘要** 激励光辐照薄膜的表面热透镜效应中, 调制频率的大小影响样品内热波的热扩散深度。通过频率控制热波扩散深度可以探测不同薄膜层面的吸收和热缺陷分布。理论分析了不同薄膜厚度下调制频率对热扩散深度的影响。结果表明, 薄膜的热导率越小、膜厚越厚, 基底中的热扩散深度就越浅, 不同材料的基底对吸收测量带来的影响就越小; 在膜厚一定的情况下, 调制频率越高, 基底中的热扩散深度越浅, 不同基底样品的光热信号将趋于相等。

**关键词** 薄膜光学; 吸收测量; 光热效应; 热扩散深度; 调制频率

中图分类号 TN247; O484.5 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS20103002.0609

## Research of Modulation Frequency in Surface Thermal Lens Technique for Coatings Weak Absorption Measurement

Tao Chunxian<sup>1,2</sup> Li Xia<sup>1</sup> Li Dawei<sup>1</sup> He Hongbo<sup>1</sup> Shao Jianda<sup>1</sup>

(<sup>1</sup> Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

<sup>2</sup> Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

**Abstract** The modulation frequency affects the thermal diffusion depth in sample during the coatings absorption measurement. The absorption value and thermal defects in various depth of the sample can be measured using proper modulation frequency. Theoretical analysis of the impact of modulation frequency on thermal diffusion depth at certain thickness of the coatings is presented. The results show that the thermal diffusion depth is shorter while the thermal conductivity is smaller and the coating is thicker, meanwhile the influence of the substrate is weaker. When the thickness of the coatings does not change, the thermal diffusion depth is shorter while the modulation frequency is higher, and the photothermal signals of different substrates tend to be same.

**Key words** thin film optics; absorption measurement; photothermal effect; thermal diffusion depth; modulation frequency

### 1 引言

光学薄膜对激光的吸收损耗——衡量薄膜性能的重要指标——已经成为限制高功率激光技术发展的一个瓶颈。对薄膜样品的吸收损耗及其热缺陷的检测, 已经成为追溯缺陷来源、分析损伤机制从而提高薄膜性能的重要手段<sup>[1~3]</sup>。自 J. P. Gordon<sup>[4]</sup>发现激光的热透镜效应以来, 激光光热探测技术广泛应用于薄膜及晶体等的吸收检测中, 如光热技术有光热偏转法、光热位移法以及热透镜法<sup>[5~8]</sup>等。表

面热透镜技术由于系统稳定、调节简便而被广泛应用, 可以实现对薄膜吸收的二维面扫描测量。

激光薄膜微弱吸收的测量, 是基于表面热透镜信号与试样所吸收激光能量间的线性关系。表面热透镜信号不仅与膜料, 基底材料有关, 其探测范围更受到膜层厚度尤其是调制频率的影响<sup>[9]</sup>。因此要实现激光薄膜弱吸收的精细定域测量, 有必要研究不同薄膜样品下抽运光调制频率对测量深度和信号精确度的影响。本文基于热传导基本原理研究调制

收稿日期: 2009-05-11; 收到修改稿日期: 2009-05-20

作者简介: 陶春先(1981—), 男, 博士研究生, 主要从事光学薄膜吸收测量与损伤检测等方面的研究。

E-mail: taochx@siom.ac.cn

导师简介: 邵建达(1964—), 男, 博士, 研究员, 主要从事光学薄膜技术与光电信息功能薄膜等方面的研究。

E-mail: jdshao@mail.shcnc.ac.cn

频率与热波传导的关系,对薄膜吸收测量技术从理论上进行扩展研究。

## 2 调制频率与探测深度的关系

对于激光薄膜样品,表面热透镜技术测量到的是热透镜效应区的吸收值。而表面热透镜信号取决于样品内激光辐照产生的热扩散深度。通常采用薄膜系统的空气、薄膜及基底的三层模型讨论热传导效应。结合三层模型的温度场计算,沿径向的温度分布是均匀的;由非稳态热传导理论可知,基底中的有效热扩散深度  $\mu_s$  可以根据下面的关系式得出:

$$\mu_s = \frac{1}{a} = \sqrt{\frac{k}{\pi \rho c}} f^{-\frac{1}{2}}, \quad (1)$$

式中  $a = \sqrt{\omega/2\alpha}$ ,  $\alpha = k/(\rho c)$ ,  $k$  为热导率,  $\rho$  为密度,  $c$  为比热,  $\alpha$  为热扩散率,  $a$  为热扩散系数及  $f$  为热源变化频率。

对于试样纵向有效热扩散深度  $\mu_s$  远小于膜面抽运光模场半径时,  $\mu_s$  半径范围内的纵向光强分布可认为是均匀的,而沿径向的温度分布则按光束强度分布。根据(1)式,对于一定材料的薄膜样品,其光热效应中的纵向热扩散深度与抽运光调制频率的平方根成反比。

根据样品的膜层和基底厚度,热扩散深度(探测深度)与调制频率的关系可分为热薄和热厚两种情况。热薄指当薄膜膜层的物理厚度小于热扩散深度,光热效应产生的热波能穿过膜层进入基底的情况。当薄膜厚度等于或大于热扩散深度时,热波无法穿透膜层,这被称为热厚条件。

由(1)式可知热扩散深度是与材料性质和热源调制频率有关的固有量值,表示的是归一化温度由 1 降到  $e^{-1}$  时的热传导深度。根据热扩散深度物理含义,如果不计薄膜表面任何形式的热损失,热薄条件下基底和膜层中实际的热扩散深度满足关系式

$$a_i d + a_s \mu = 1. \quad (2)$$

式中  $a_i$  和  $a_s$  分别表示膜层和基底的热扩散系数,  $d$  和  $\mu$  分别表示膜层厚度和基底中的热扩散深度。结合(1)式和(2)式,基底中的热扩散深度表示为

$$\mu = \frac{1 - a_i d}{a_s} = \mu_s - d \sqrt{\frac{k_s \rho_i c_i}{k_i \rho_s c_s}} = \sqrt{\frac{k_s}{\rho_s c_s}} f^{-\frac{1}{2}} - d \sqrt{\frac{k_s \rho_i c_i}{k_i \rho_s c_s}}. \quad (3)$$

由(3)式可以看到,热薄条件下实际热扩散深度较之于均质块体材料更加复杂。在一定调制频率下,随着薄膜厚度的增加,膜层逐渐体现出尺寸效

应。除调制频率和基底材料的性质以外,膜层同样影响热扩散深度的大小。在不同的膜料和膜层厚度下,其对探测深度的影响不甚相同,下面基于常用基底和薄膜材料的热物性参数(如表 1 所示),从量级上考虑它们对测量精度的作用程度。

表 1 两种常用基底与两种薄膜材料的热物性参数

Table 1 Thermal and physical property of two substrates and two thin film materials

Film heat conductivity / [W/(m·K)]	Bulk material heat conductivity / [W/(m·K)]	Bulk material density / (kg/m <sup>3</sup> )	Bulk material massic heat capacity / [J/(kg·K)]
K9	1.5	2530	765
Quartz	1.8	2200	787
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.021	27	3980
HfO <sub>2</sub>	0.00077	17	5665

图 1 所示为调制频率 10 Hz 时,基底热扩散深度与单层膜厚度的变化关系。对于 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 单层膜,基底中实际热扩散深度远大于膜厚。但石英的热扩散深度要比 K9 的长 20~25  $\mu\text{m}$  左右。HfO<sub>2</sub> 单层膜由于其较低的热导率,在基底中的热扩散深度随膜层厚度的增大急剧减小,在膜厚超过 2.3  $\mu\text{m}$  时已经变成热厚的情况。这是表面热透镜技术测量样品的精确吸收时要防止发生的情况。

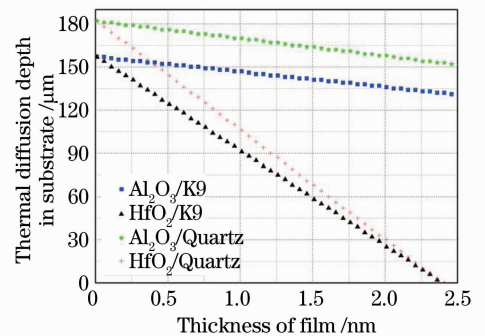


图 1 基底中热扩散深度随膜层厚度的变化

Fig. 1 Relation of thermal diffusion depth versus thickness of coating layer

图 2 所示为基底中实际热扩散深度随抽运光调制频率的变化情况。图 2(a)是 K9 基底下,膜厚分别为 500 nm 和 900 nm 的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 单层膜,表现出膜层较厚时热波在基底中的衰减要快,当频率增大后膜厚不同其热扩散深度不同。图 2(b)是 900 nm 的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 单层膜分别在 K9 和石英基底的情况,与图 2(a)的情况不同,不同基底的实际热扩散深度随频率的增大由不同趋于相等。随着频率增大,两种基底材料的样品其基底内的热扩散深度均急剧减

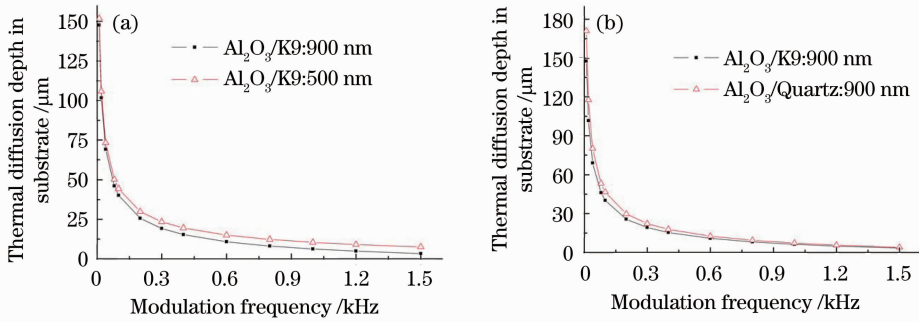


图 2 基底中的实际热扩散深度随抽运光调制频率的变化

Fig. 2 Relation of thermal diffusion depth in substrate versus modulation frequency

小,这表明更多的取决于膜料的热物性参数而与基底材料关系不大。

在高频调制条件下热扩散深度局限于膜层之内  $\mu_t = \sqrt{k/(\pi f \rho c)}$ 。此时得到的热透镜信号完全是由于膜层吸收或膜层热缺陷引起的。因此热厚探测是对样品采用变抽运光调制频率进行纵向分辨测量的一个必需的条件。

### 3 光热信号与调制频率的关系

对于定热源分布的薄膜系统,当系统达到热平衡状态时认为,表面位移的分布如光强分布一样,也呈高斯分布。在确定深度的膜层上,薄膜吸收的高

斯光热分布特性使得温升具有同样高斯分布的特点,并且在时域以调制频率被正弦调制。基于线性热膨胀理论得到的表面热包中心高度  $u_0$  表达式为

$$u_0 = \frac{AP(\theta_{T_f}d + \theta_{T_s}\mu_s)}{4fr^2(\rho_f c_f d + \rho_s c_s \mu_s)} \quad (4)$$

式中  $r, P$  分别为激励激光的半径和功率,  $A, f$  为薄膜吸收率和热源调制频率,  $\theta_{T_f}$  和  $\theta_{T_s}$  分别为薄膜和基底的线性膨胀系数,  $\rho_f, \rho_s$  和  $c_f, c_s$  分别为薄膜和基底的密度与比热。根据(4)式和表 1,在同样的吸收和抽运光强度与光斑大小的情况下,计算表面热包高度随调制频率的变化,结果如图 3 所示。

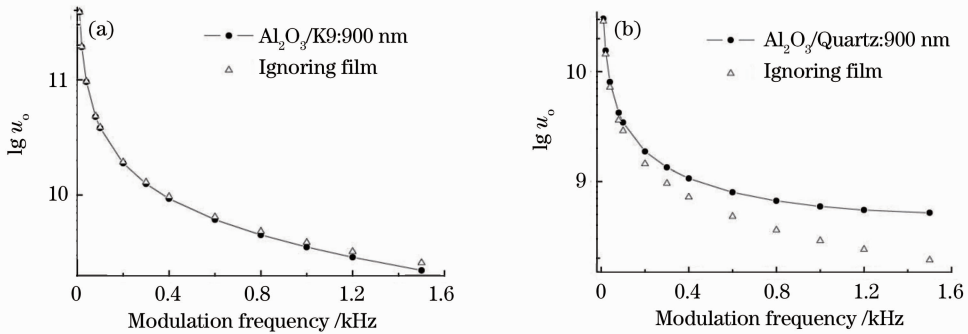
图 3  $\text{Al}_2\text{O}_3$  单层膜表面热包高度随调制频率的变化Fig. 3 Relation of thermal bump height versus modulation frequency for  $\text{Al}_2\text{O}_3$  film

图 3(a)中, K9 基底的样品由于膜和基底的热膨胀系数相差较小,两条曲线近乎重合,整个计算频率范围是否忽略膜厚差别不大;但图 3(b)所示石英基底的样品,由于膜与基底的热膨胀系数相差一个量级,在计算频率范围内膜厚的影响随着调制频率的增大已经逐渐表现出来,与忽略膜厚的计算结果已经偏离。不论膜层忽略与否,镀制在 K9 基底与石英两种基底上的样品,其表面热包高度在低频时都相差一个量级,但随频率增大两者趋于相等。

图 4 给出了实验测得的光热信号随抽运光调制

频率的变化曲线。由于在改变抽运光调制频率时,光热信号反映了更多的薄膜本身的力热物性,不同的膜料与膜厚对随频率变化的光热信号都有较大的影响。由图 2 热传导规律可知,随着调制频率的增大膜层从热薄逐渐向热厚转变,光热信号的产生逐渐由膜层占主导因素。此时光热信号逐渐减小,一方面是膜层相对于基底的对信号产生的作用要小,另一方面是调制频率的增大导致辐照到膜层的能量减少。图 5 给出的是 K9 基底下,不同膜厚的  $\text{Al}_2\text{O}_3$  单层膜的光热信号随抽运光调制频率的变化。两曲

线的变化趋势基本一致,只是膜层厚样品的信号幅度要小,这与基底内的实际热扩散深度的变化规律相同,但与通常意义的光薄时随膜厚增大吸收要增大的理论是相反的。上述结果是在基于热薄条件下

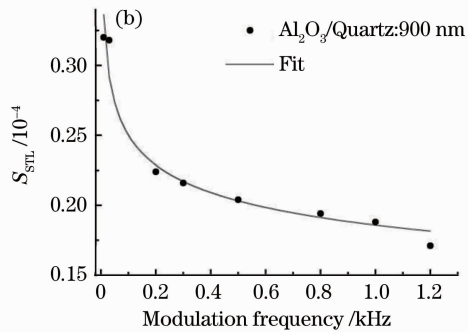
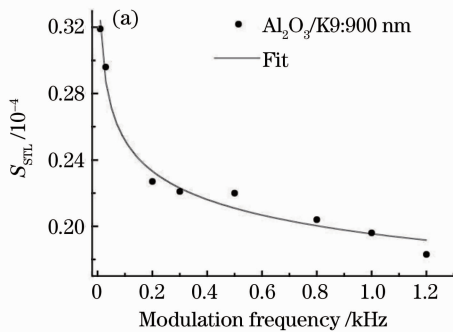


图 4  $\text{Al}_2\text{O}_3$  不同基底单层膜的光热信号随抽运光调制频率的变化

Fig. 4 Relation of photothermal signal versus modulation frequency for  $\text{Al}_2\text{O}_3$  film on different substrates

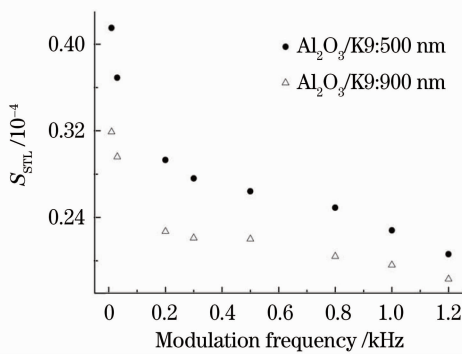


图 5 不同厚度  $\text{Al}_2\text{O}_3$  单层膜的光热信号随抽运光调制频率的变化

Fig. 5 Relation of photothermal signal versus modulation frequency for  $\text{Al}_2\text{O}_3$  film with different thickness

## 4 结 论

激励光辐照薄膜的表面热透镜效应中,调制频率的大小影响样品内热波的热扩散深度。通过频率控制热波扩散深度可以探测不同薄膜层面的吸收和热缺陷分布。结果表明,薄膜的热导率越小、膜厚越厚,基底中的热扩散深度就越浅,不同材料的基底对吸收测量带来的影响就越小;在膜厚一定的情况下,调制频率越高,基底中的热扩散深度越浅,不同基底样品的光热信号将趋于相等。光热信号随抽运光调制频率的实际变化比较复杂,影响因素较多,对样品吸收更为准确的理论模型有待建立。如果薄膜样品满足热厚条件且热波局限在膜层中,理论上可实现对薄膜吸收的三维分辨测量。

的薄膜系统简化模型下得到的近似值,在膜层由热薄向热厚的转化过程中会出现较大误差,因此需要明确标定不同条件下所用调制频率的有效范围。

## 参 考 文 献

- Z. L. Wu, C. J. Stolz, S. C. Weakley *et al.*. Damage threshold prediction of hafnia-silica multilayer coatings by nondestructive evaluation of fluence-limiting defects[J]. *Appl. Opt.*, 2001, **40**(12): 1897~1906
- Laurent Gallais, Mireille Commandré. Simultaneous absorption, scattering, and luminescence mappings for the characterization of optical coatings and surfaces[J]. *Appl. Opt.*, 2006, **45**(7): 1416~1424
- B. Bertussi, J. Y. Natoli, M. Commandré. High-resolution photothermal microscope: a sensitive tool for the detection of isolated absorbing defects in optical coatings[J]. *Appl. Opt.*, 2006, **45**(7): 1410~1415
- J. P. Gordon, C. C. Leite, R. S. Moore *et al.*. Long-transient effects in lasers with inserted liquid samples[J]. *Appl. Phys.*, 1965, **36**(1): 3~8
- Z. L. Wu, P. K. Kuo, Y. S. Lu *et al.*. Nondestructive evaluation of thin film coatings using a laser-induced surface thermal lensing effect [J]. *Thin Solid Films*, 1996, **290-291**: 271~277
- Xu Cheng, Dong Hongcheng, Ma Jianyong *et al.*. Influences of  $\text{SiO}_2$  protective layers and annealing on the laser-induced damage threshold of  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  films[J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2008, **6**(3): 228~230
- Xu Cheng, Dong Hongcheng, Xiao Qiling *et al.*. Optical properties and laser-induced damage threshold of  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  Films deposited by different methods[J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(10): 1595~1599  
许程,董洪成,肖祁陵等.不同方法制备的  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  薄膜光学性能和激光损伤阈值的对比分析[J]. *中国激光*, 2008, **35**(10): 1595~1599
- Hu Haiyang, Fan Zhengxiu, Zhao Qiang. Measuring weak absorbance of thin film coatings by surface thermal lensing technique[J]. *Acta Optica Sinica*, 2001, **21**(2): 150~154  
胡海洋,范正修,赵强.表面热透镜技术探测光学薄膜的微弱吸收[J]. *光学学报*, 2001, **21**(2): 150~154
- Yin Qingrui, Wang Tong, Qian Menglu. Photoacoustic Photothermal Technique and Its Application [M]. Beijing: Science Press, 1991  
殷庆瑞,王通,钱梦露.光声光热技术及其应用[M].北京:科学出版社,1991