

红外光学薄膜材料折射率温度特性的研究方法

王多书, 李佑路, 李凯朋, 王济洲, 董茂进

(兰州空间技术物理研究所 真空技术与物理重点实验室, 甘肃 兰州 730000)

摘要: 红外光学系统中靠近探测器的光学元件通常处于低温环境中, 低温环境会使得光学元件表面薄膜的透射光谱发生漂移, 进而严重影响红外光学系统的成像质量。研究发现光谱漂移是由于系统中红外光学薄膜的折射率发生了改变。论文针对红外光学薄膜材料折射率温度特性开展了研究, 在光学薄膜理论上, 通过分析几种波长色散模型的特点, 提出了一种红外光学薄膜材料折射率温度特性的研究方法。该方法基于不同温度测得的透射率光谱, 通过光谱反演得到不同温度条件下光学薄膜材料的折射率, 并在 Cauchy 色散模型的基础上, 通过数据拟合分析, 能够得到红外光学薄膜材料的折射率温度/波长色散公式。采用该方法对 PbTe、Ge 两种典型红外光学薄膜材料折射率温度特性进行了分析研究, 验证了该方法的可行性。

关键词: 温度特性; 红外薄膜; 色散模型

中图分类号: O439 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA201847.0404006

Research method of the temperature characteristic of infrared thin-films

Wang Duoshu, Li Youlu, Li Kaipeng, Wang Jizhou, Dong Maojin

(Science and Technology on Vacuum Technology and Physics Laboratory, Lanzhou Institute of Physics, Lanzhou 730000, China)

Abstract: Optical elements closed to photodetector always work in low temperature in infrared optical system, and the transmitted spectrum of the system would be shifted by the low temperature condition. This shift can affect the image quality of the system seriously. Some study have found that the reasons of the spectral shift are the change of the refractive index of the infrared thin-films in the system. In the paper, temperature characteristics of the infrared thin-films were studied. Based on the theory of optical thin film and analysis of several kinds of wavelength dispersion model, a new research on the temperature characteristic method of infrared thin film was put forward. With the method, the refractive index of infrared thin film at different temperature can be measured by spectral inversion according to the transmission spectra, and then, a formula for calculating refractive index of infrared thin film can be deduced based on the Cauchy dispersion model through data fitting analysis. The temperature characteristics of two kinds of infrared typical film materials(PbTe and Ge) were studied with the method, and the results verify the validity of the method.

Key words: temperature characteristic; infrared thin-films; dispersion model

收稿日期: 2017-11-05; 修订日期: 2017-12-03

作者简介: 王多书(1973-), 男, 研究员, 博士, 主要从事空间光学薄膜技术方面的研究。Email: wang_d_s@163.com

0 引言

随着光学薄膜技术的发展,红外光学薄膜已经广泛应用于航空、航天、环保、通讯等多个领域^[1-2],红外技术的发展和运用,对于红外光学薄膜的性能提出了更高要求。为了提高红外探测器信噪比,探测器通常工作在低温条件下,与其配合使用的红外滤光片也处于低温环境下。相对于常温光谱,红外滤光片在低温下工作时光谱会发生一定的漂移,称这一现象为“温漂”。例如,在80 K低温条件下,采用PbTe和ZnS两种材料镀制的红外滤光片光谱会向长波方向发生移动,分析发现造成温漂的原因是红外光学薄膜材料折射率发生了变化。

温漂现象会导致红外滤光片光谱通带位置、形状、透射率等发生明显变化,对于红外窄带/超窄带滤光片等高精度红外光学薄膜产品,温漂现象甚至会导致滤光片功能失效,从而严重影响光学系统的性能,导致成像光谱范围、信噪比、色平衡等发生明显改变,严重时系统将无法工作。因此,对于不同温度环境,红外光学薄膜研制应充分考虑其薄膜材料的温度特性。红外光学薄膜材料种类较少^[3-6],比较典型的常用红外光学薄膜材料主要有PbTe、Ge、Si、ZnS、ZnSe、YF₃等。从温度对其光谱影响的规律来看,主要存在两类^[7],一类材料随温度升高折射率呈减小趋势,典型材料如碲化铅(PbTe),另一类材料折射率随温度升高而增大,典型材料如锗(Ge)。因此研究清楚几种典型材料的折射率温度特性对于了解红外光学薄膜材料的低温特性有重要作用。分析资料显示,已有成果对红外光学薄膜材料折射率温度特性的研究缺乏系统性,所得折射率温度/波长色散公式在使用波长及温度范围方面有局限性,且准确性有待提升。文中将针对红外光学薄膜材料的温度特性展开研究,试图寻求一种研究获得红外光学薄膜材料折射率温度/波长色散公式的有效方法。

1 理论基础及研究方法

(1) 理论基础

由传输矩阵可以计算光学薄膜系统的透射率 $T(\lambda, d, n, k)$,如公式(1)所示:

$$T(\lambda) = \frac{4\eta_0\eta_g}{(\eta_0B+C)(\eta_0B+C)^*} \quad (1)$$

式中: η_0 和 η_g 表示薄膜系统入射介质和基底的光学

导纳; B 和 C 反映了薄膜系统的光学导纳,可由膜层折射率、消光系数及厚度计算出来。由此可以看出不同温度条件下若膜层折射率改变,光谱也会发生变化。

(2) 试验方法

文中研究涉及到膜层镀制、光谱测试、膜层折射率反演等。膜层镀制采用离子束辅助蒸发沉积方法,PbTe薄膜采用阻蒸方法制备,Ge薄膜采用电子束加热蒸发方式制备。光谱测试采用配有液氮杜瓦温度控制仪的Perkin Elmer Frontier傅里叶变换红外光谱仪,测试过程中利用液氮冷却滤光片至低温(77 K),通过温控系统控制滤光片温度,可获得从液氮温度到常温之间不同温度的透射光谱。采用包络线-全光谱拟合反演法^[8-9]反演计算得到膜层的光学薄膜参数。

2 红外光学薄膜材料折射率温度特性研究方法

研究红外光学薄膜材料折射率温度特性时,在波长色散模型的基础上,文中试图引入温度因子,从而建立折射率温度/波长色散模型。选择常见的波长色散Cauchy模型如公式(2)所示,其中 A_n, B_n, C_n 是常数,通常情况下波段不太宽时,展开式取前面两项。对于大多数介质薄膜,在远离吸收波段时,其光学折射率波长色散均满足此式。

$$n(\lambda) = A_n + \frac{B_n}{\lambda^2} + \frac{C_n}{\lambda^4} + \dots \quad (2)$$

假设已测得薄膜系统在77~300 K温度范围的透射光谱。为简化研究又不失一般性,选取相同 ΔT 间隔的 T_1, T_2, \dots, T_m 等温度点的透射光谱作为研究对象。

对 T_1 温度透射光谱进行反演得到膜层材料折射率,结合Cauchy模型分析拟合,可得到系数值 A_1, B_1, C_1 ,拟合方程如公式(3)所示:

$$n_1 = f_1(\lambda) = A_1 + \frac{B_1}{\lambda^2} + \frac{C_1}{\lambda^4} + \dots \quad (3)$$

按上述方法可分别得到 T_2, T_3, \dots, T_m 等温度对应的系数值 $(A_2, B_2, C_2), (A_3, B_3, C_3), \dots, (A_m, B_m, C_m)$ 及拟合公式(4)~(6):

$$n_2 = f_2(\lambda) = A_2 + \frac{B_2}{\lambda^2} + \frac{C_2}{\lambda^4} + \dots \quad (4)$$

$$n_3 = f_3(\lambda) = A_3 + \frac{B_3}{\lambda^2} + \frac{C_3}{\lambda^4} + \dots \quad (5)$$

$$n_m = f_m(\lambda) = A_m + \frac{B_m}{\lambda^2} + \frac{C_m}{\lambda^4} + \dots \quad (6)$$

由此可得到系数矩阵 M ,如公式(7)所示:

$$M = \begin{bmatrix} A_1 & B_1 & C_1 & \cdots \\ A_2 & B_2 & C_2 & \cdots \\ & & \vdots & \\ A_m & B_m & C_m & \cdots \end{bmatrix} \quad (7)$$

Cauchy 模型只表明了折射率与波长之间的关系,设想将不同温度点 Cauchy 模型中的系数值同时视为温度 T 的函数,即假定 $n=f(\lambda, T)$ 将系数矩阵 M 中的每一个列向量进行拟合,则可得到各系数关于温度 T 的拟合函数,拟合后可以得到该薄膜材料的折射率温度/波长色散公式,如公式(8)所示:

$$A_n=f(T), B_n=f(T), C_n=f(T) \quad (8)$$

将 A_n, B_n, C_n 代入折射率波长色散模型 $n=f(\lambda, T)$ 中,可以得到该光学薄膜材料的温度/波长色散公式,如公式(9)所示:

$$N=f_n(\lambda, T)=A_n+\frac{B_n}{\lambda^2}+\frac{C_n}{\lambda^4}+\cdots \quad (9)$$

综上所述,可归纳出红外光学薄膜材料折射率温度特性研究的方法如下。

第一步:镀制光学膜层系统;第二步:利用配有液氮杜瓦的红外光谱仪测量膜层系统在研究温度范围内的透射光谱;第三步:采用包络线-全光谱拟合等反演方法,在所研究波长范围内,反演得到研究温度范围的膜层折射率;第四步:利用 Cauchy 波长色散模型对不同温度点的膜层折射率进行拟合,得到系数矩阵 M ,并对 M 中列向量进行拟合,得到各系数 A_n, B_n, C_n 与温度 T 的函数关系;第五步:将 A_n, B_n, C_n 代入折射率波长色散模型,得到温度/波长色散公式 $n=f(\lambda, T)$ 。

3 典型红外光学薄膜材料折射率温度特性分析验证

为了验证上述方法的正确性,论文选择典型红外光学薄膜材料 PbTe 和 Ge 进行了测量分析。首先按照上述归纳步骤,得到材料折射率温度/波长色散公式,利用该公式得到的膜层材料折射率计算出对应单层薄膜系统透射光谱。然后利用相同工艺方法镀制具有相同厚度的单层膜,并测量透射光谱。将相同温度条件的计算光谱与实测光谱比较,若二者一致,则表明由上述方法得到的折射率温度/波长色散公式是正确的,从而可以验证该方法的可行性。

3.1 PbTe 材料

采用阻蒸方法在 Ge 基底上镀制 PbTe 单层膜,膜厚 750 nm,真空度 3.0×10^{-3} Pa,真空室温度 250 °C,

沉积速率 10 \AA/s ($1 \text{ \AA}=10^{-10} \text{ m}$)。采用上述方法得到的 7~12 μm 波长范围内不同温度条件下的透射光谱,并得到折射率与波长变化关系,如图 1 所示(此处只给出 3 个温度点,实际测量了 12 个点),由此拟合出的系数如表 1 所示。

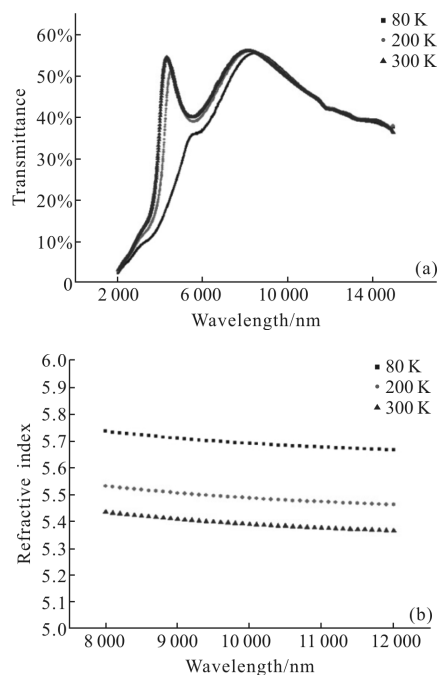


图 1 不同温度条件下 PbTe 单层膜透射率光谱(a)及其折射率随波长变化趋势(b)

Fig.1 Transmittance spectra of PbTe film in different temperature (a), and its refractive index variation with wavelength (b)

表 1 不同温度条件下 PbTe 单层膜折射率波长色散模型中的系数值

Tab.1 Coefficient value of the PbTe film refractive index dispersion model in different temperature

Temperature/K	A_n	B_n	C_n
80	5.611 4	8.011	0.232 3
100	5.576 5	7.999	0.227 3
120	5.521 0	8.002	0.220 3
140	5.508 8	8.012	0.219 4
160	5.447	8.008	0.218 7
180	5.427 3	8.010	0.210 3
200	5.407 3	8.004	0.209 6
220	5.382 8	7.997	0.206 5
240	5.374 3	7.984	0.205 2
260	5.365 7	8.001	0.204 8
280	5.358 5	8.008	0.203 7
300	5.349 8	8.010	0.203 0

由图 1 可以看出,随温度升高 PbTe 单层膜光谱

向短波方向漂移,其薄膜材料折射率呈减小趋势。相同温度条件下,随波长增大折射率呈下降趋势。

采用多项式拟合方法对系数 A_n 、 B_n 、 C_n 按照温度变化进行拟合,其中, A_n 拟合后与 T 相关。 B_n 数据分布散乱,没有规律, C_n 有一定规律,但此二者的最大与最小值之差对于折射率的影响很小,故可取平均值。代入公式(9),得到 PbTe 折射率温度/波长色散表达式,如公式(10)所示:

$$n=f(\lambda, T)=5.8284-0.00304T+4.6145\times 10^{-6}T^2+\frac{8.0028}{\lambda^2}+\frac{0.2154}{\lambda^4} \quad (10)$$

采用上式可得到 PbTe 膜层在 7~12 μm 波长范围内不同温度的折射率值,将其引入设计可得到 PbTe 单层膜计算光谱,在相同工艺条件下重新制备单层膜并实测光谱,设计光谱与实测光谱对比如图 2 所示。

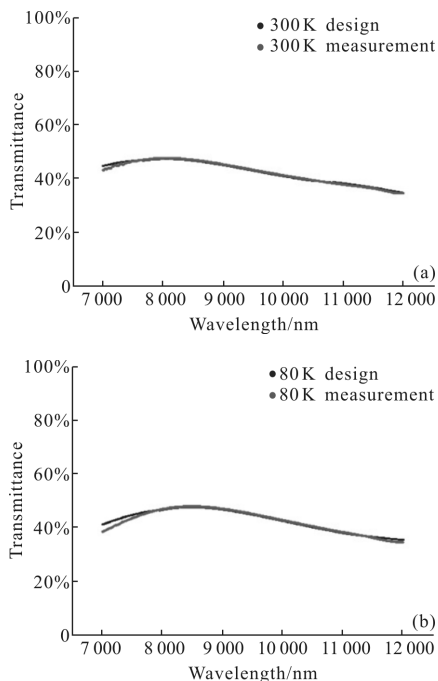


图 2 不同温度条件下 PbTe 单层膜计算光谱与实测光谱对比图
Fig.2 Comparison between design and measurement transmittance spectra of PbTe film in different temperature

由图 2 可以看出在常温和低温条件下,由 PbTe 折射率温度/波长色散公式计算获得的光谱与实测光谱基本吻合,表明文中提出的研究方法适用于 PbTe 红外光学薄膜材料折射率温度特性研究。短波位置出现轻微偏差,主要是因为拟合计算折射率过程中,7 μm 附近材料存在轻微吸收,折射率拟合计算不准造成的。

3.2 Ge 材料

采用离子束辅助电子枪加热沉积方法在 ZnSe 基

底下镀制 Ge 单层膜,膜厚 1650 nm,真空度 $3.0\times 10^{-3}\text{Pa}$,真空室温度 150 $^{\circ}\text{C}$,沉积速率 5 $\text{\AA}/\text{s}$ (1 $\text{\AA}=10^{-10}\text{m}$),电子枪电子束流为 300 mA。采用上述方法得到不同温度条件下 Ge 单层膜光谱曲线(只给出 3 个点,共取了 12 个点)及其折射率随波长变化关系,如图 3 所示。拟合出的系数值如表 2 所示。

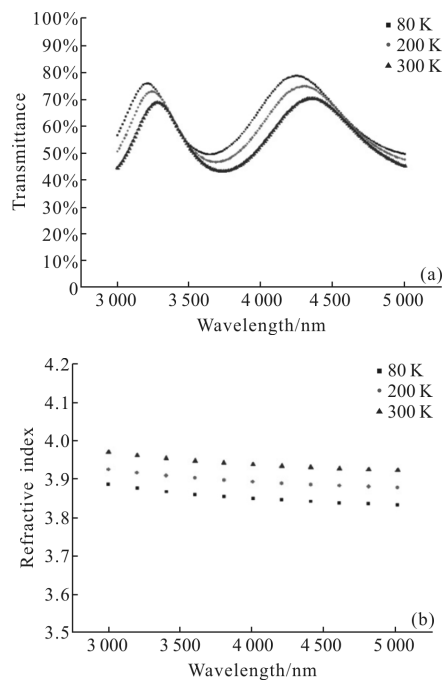


图 3 不同温度条件下 Ge 单层膜透射率光谱(a)及其折射率随波长变化趋势(b)

Fig.3 Transmittance spectra of Ge film in different temperature (a), and its refractive index variation with wavelength (b)

表 2 不同温度条件下 Ge 单层折射率波长色散模型中各系数值

Tab.2 Coefficient value of the Ge refractive index dispersion model in different temperature

Temperature/K	A_n	B_n	C_n
80	3.806 6	0.695 71	0.031 0
100	3.808 2	0.799 33	0.013 7
120	3.810 5	0.864 89	0.011 5
140	3.814 7	0.922 25	0.021 4
160	3.826 3	0.872 89	0.049 2
180	3.844 4	0.684 07	0.038 5
200	3.852 9	0.670 48	0.034 9
220	3.860 6	0.669 92	0.015 2
240	3.869 1	0.674 11	0.021 4
260	3.878 9	0.686 74	0.017 5
280	3.887 7	0.702 59	0.017 8
300	3.897 3	0.681 9	0.032 1

可以看出随温度升高,Ge 薄膜材料折射率逐渐

增大,其单层膜光谱向长波方向漂移。相同温度条件下,折射率随波长增大呈下降趋势。

由此拟合 A_n, B_n, C_n, A_n, B_n 采用多项式拟合,与 T

$$n(\lambda, T) = 3.8415 - 9.682 \times 10^{-4} T + 7.479 \times 10^{-6} T^2 - 1.219 \times 10^{-8} T^3 +$$

$$\frac{-2.5140 + 0.07776 T - 6.2349 \times 10^{-4} T^2 + 2.0572 \times 10^{-6} T^3 - 2.414 \times 10^{-9} T^4}{\lambda^2} + \frac{0.0245}{\lambda^4} \quad (11)$$

将由上式计算的 Ge 膜折射率引入膜层设计,在相同工艺条件下重新制备 Ge 单层膜并实测光谱,计算光谱与实测光谱对比如图 4 所示。

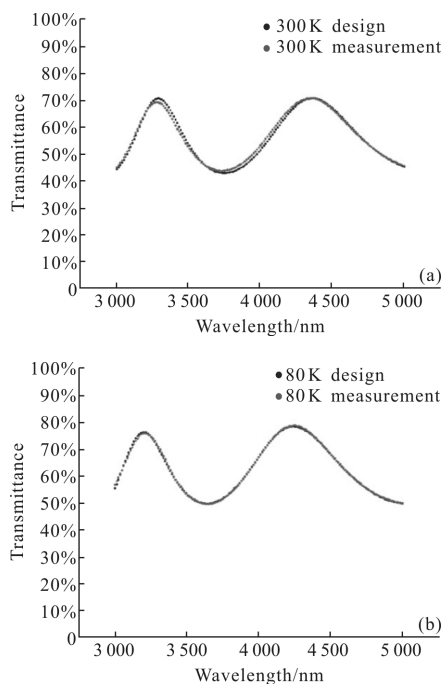


图 4 不同温度条件下 Ge 单层膜计算光谱与实测光谱对比图

Fig.4 Comparison between design and measurement transmittance spectra of Ge film in different temperature

图 4 可以看出在常温和低温条件下,由 Ge 折射率温度/波长色散公式计算的光谱与实测光谱基本吻合,表明文中提出的研究方法适用于 Ge 红外光学薄膜材料折射率温度特性研究。

4 结 论

文中在光学薄膜理论及 Cauchy 色散模型基础上,分析提出了一种红外光学薄膜材料折射率温度特性的研究方法,该方法基于不同温度条件下的透射光谱,通过光谱反演得到不同温度条件下光学薄膜材料的折射率,并利用 Cauchy 色散模型,通过数据拟合分析,得到了红外光学薄膜材料的折射率温度/波长色散公式。采用该方法对典型红外光学薄膜

有关, C_n 数据无规律,与 T 无关,取平均值,代入公式(9),得到 Ge 薄膜材料的折射率温度/波长色散表达式,如公式(11)所示:

材料 PbTe 和 Ge 进行了研究验证。结果表明,在常温和低温条件下,由该方法能够快速准确获得 PbTe 和 Ge 薄膜材料折射率温度/波长色散公式,由此计算得到的光谱与其实测光谱吻合,表明文中提出的研究方法适用于典型红外光学薄膜材料折射率温度特性研究。

参 考 文 献:

- [1] Tang Jinfa, Gu Peifu, Liu Xu, et al. Modern optical thin film technology [M]. Hangzhou: Zhejiang University Press, 2006. (in Chinese)
- [2] Wang Duoshu, Xiong Yuqing, Chen Tao, et al. Applications of optical thin film technology in China's aerospace industry [J]. *Journal of Vacuum Science and Technology*, 2012, 32(8): 710-716. (in Chinese)
- [3] Liu Peng. The theoretic modeling and experimental measurement of the thermo-optic coefficient for germanium-film [D]. Wuhan: Wuhan University of Technology, 2012. (in Chinese)
- [4] Li Youlu, Wang Duoshu, Li Kaipeng, et al. Studies on temperature characteristic on refractive index of infrared optical film[J]. *Vacuum and Cryogenics*, 2015, 21(3): 146-150.
- [5] Ye Fan, Gu Bing, Huang Xiaoqin, et al. Development and prospect of refractive-index dispersion of thin films [J]. *Optical Instruments*, 2010, 32(4): 90-94. (in Chinese)
- [6] Bai Shengyuan, Gu Peifu, Liu Xu, et al. Optical stability of thin film filters [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2001, 30(5): 576-580. (in Chinese)
- [7] Xiong Yuqing, Li Shaomei, Luo Chongtai, et al. Study on spectral shift of PbTe/ZnS infrared multilayer filters [J]. *Optical Technology*, 1999, 4: 65-69.
- [8] Li Kaipeng, Wang Duoshu, Li Chen, et al. Study on optical thin film parameters measurement method [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2015, 44(3): 1048-1052. (in Chinese)
- [9] Sun Xiangbin, Ren Quan, Yang Hongliang, et al. Several methods of measuring the refractive index of the film [J]. *Chinese Journal of Quantum Electronics*, 2005, 22(1): 13-18. (in Chinese)