07;12

Сравнение чувствительности термолинзового и фазового (интерференционного) методов фототермической спектроскопии

© А.Ю. Лукьянов, М.А. Новиков

Институт физики микроструктур РАН,
603600 Нижний Новгород, Россия
Email: luk@ipm.sci-nnov.ru

(Поступило в Редакцию 10 января 2000 г.)

Получены выражения для амплитуд сигналов, регистрируемых при использовании термолинзового и фазового (интерферометрическом) методов фототермической спектроскопии в условиях объемного поглощения возбуждающего излучения для случаев соосного и перпендикулярного распространения зондирующего и возбуждающего излучения. На основе численных расчетов проведено сравнение чувствительности указанных методов для различных значений параметров. Показано преимущество фазового метода, особенно большое в тех случаях, когда размеры области переменных возмущений температуры существенно превышают радиус зондирующего света.

На протяжении последнего десятиления методы фототермической (термоволновой) спектроскопии получают все более широкое применение в микроскопии и интроскопии, в исследованиях теплофизических характеристик различных объектов и сред, в системах контроля за примесями и загрязнениями и т.д. Особый интерес вызывают оптические методы фототермической спектроскопии, поскольку они являются полностью бесконтактными и обладают высокой чувствительностью и пространственным разрешением. Благодаря простоте реализации наиболее популярными среди оптических методов фототермической спектроскопии остаются дефлекторный метод и метод тепловой линзы. Их основные закономерности изучены достаточно хорошо, особенно в приближении геометрической оптики [1,2]. Реже используется, а потому хуже изучен фазовый (интерферометрический) метод. И практически совсем не уделено внимания сравнению возможностей указанных трех методов. Фактически этому вопросу посвящены всего несколько работ. Так, в работе [3] проведен сравнительный анализ предельной чувствительности всех трех методов в ряде предельных случаев поглощения света в объеме исследуемого образца в приближении геометрической оптики. В работе [4] проведен сравнительный анализ величин фототермических сигналов, регистрируемых с помощью дефлекторного и фазового методов в случае поглощения света на поверхности исследуемого объекта.

Данная работа посвящена сравнению фазового и термолинзового сигналов для случая объемного поглощения света. Мы будем придерживаться методики вычисления фототермических сигналов, предложенной в [4] и позволяющей получать выражения, не ограничиваясь приближением геометрической оптики. Она состоит в решении задачи дифракции и в основном сводится к вычислению интеграла Френеля–Кирхгофа.

Сначала рассмотрим продольную конфигурацию (рис. 1). Распределение температуры в этом случае имеет цилиндрическую симметрию, поэтому уравнение тепловой диффузии запишем в цилиндрических координатах. Будем рассматривать случай непрерывной накачки, промодулированной по синусоидальному закону и имеющей Гауссово распределение интенсивности,

$$\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial T}{\partial r}\right)+\frac{\partial^2 T}{\partial z^2}-\frac{1}{\chi}\frac{\partial T}{\partial t}=-\frac{Q(r,\varphi,z,t)}{K},\qquad(1)$$

где

$$Q(r,\varphi,z,t)=\alpha\frac{P_{\mathrm{pump}}}{\pi r_{\mathrm{pump}}^2}\exp\left(-\frac{2r^2}{r_{\mathrm{pump}}^2}\right)\cos\Omega t,\qquad(2)$$

r_{pump} — радиус пучка накачки, P_{pump} — средняя мощность накачки, K — коэффициент теплопроводности, $\chi=K/(\rho c)$ — коэффициент температуропроводности, ρ — плотность, c — теплоемкость.

Пренебрегая теплопереносом вдоль оси z, колебания температуры на частоте модуляции Ω можно записать в виде

$$T_\Omega(r,z=0,\varphi,t)=\mathrm{Re}\left\{\int\limits_0^\infty \xi d\xi J_0(r\xi)\times\left(\frac{\alpha}{K}\frac{P_{\mathrm{pump}}}{2\pi}e^{-\xi^2 r_{\mathrm{pump}}^2/8}\right)\frac{e^{i\Omega t}}{\xi^2+i\Omega/\chi}\right\}.\qquad(3)$$

Зондирующий свет с длиной волны λ_{probe}, прошедший соосно с пучком накачки через нагретую таким образом область длиной l, получит дополнительный набег фазы (при условии, что тепловая линза тонкая)

$$\Phi(r,\varphi,t)=\frac{2\pi}{\lambda_{\mathrm{probe}}}\frac{\partial n}{\partial T}\int\limits_{-l/2}^{l/2}T(r,z,\varphi,t)dz=\frac{2\pi}{\lambda_{\mathrm{probe}}}\frac{\partial n}{\partial T}lT_\Omega(r,z=0,\varphi,t).\qquad(4)$$

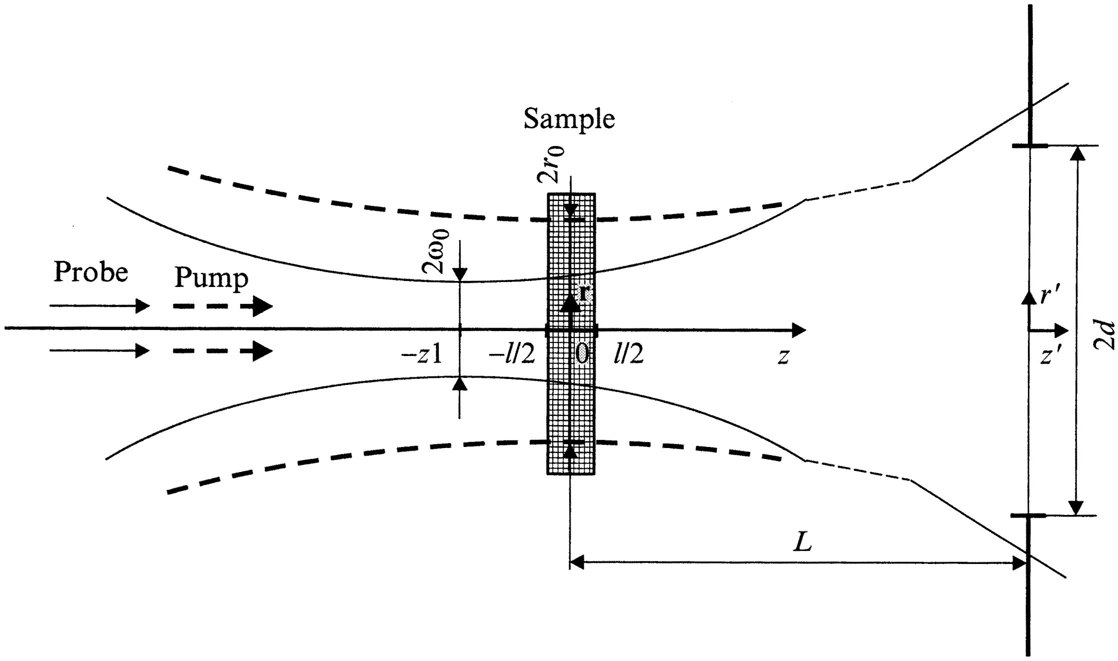

Рис. 1. Продольная конфигурация. Возбуждающий и зондирующий пучки света распространяются соосно; длина образца меньше длины перетяжки возбуждающего пучка света.

Теперь найдем распределение амплитуды поля излучения зондирующего света в дальней зоне, где расположен фотоприемник. Интеграл Френеля–Кирхгофа в цилиндрических координатах запишется в виде

$$U(r',\varphi',t) = \frac{i}{\lambda_{\text{probe}}L}\int d\varphi \int rdrU(r,z=0,\varphi,t)$$
$$\times \exp\left\{-\frac{ik}{2L}[r^2+r'^2-2rr'\cos(\varphi-\varphi')]\right\}, \qquad (5)$$

где L — расстояние от нагретой области до фотоприемника, k — волновое число зондирующего света, $U(r,z=0,\varphi)$ — амплитуда поля излучения зондирующего лазера в нагретой области.

Нас интересуют достаточно малые тепловые возмущения, для которых выполняется следующее приближение:

$$U(r,z=0,\varphi,t) = U_0(r,z=0,\varphi)e^{i\Phi(t)}$$
$$\approx U_0(r,\varphi)(1+i\Phi(t)). \qquad (6)$$

Здесь U_0 — амплитуда поля зондирующего лазера в отсутствии тепловых возмущений. Пусть она распределена по гауссовому закону [5]

$$U(r,z{=}0,\varphi,t) = E_0\frac{\omega_0}{\omega(z_1)}\exp\left[-r^2\left(\frac{1}{\omega^2(z_1)}+\frac{ik}{2R(z_1)}\right)\right],$$
$$\omega^2(z){=}\omega^2(1+z^2/z_0^2), \quad R(z){=}z(1+z_0^2/z^2),$$
$$z_0{=}\pi\omega^2 n/\lambda_{\text{probe}}.$$

В этом случае распределение интенсивности зондирующего света в дальней зоне будет иметь следующий вид:

$$I(r',\varphi',t) = |U(r',\varphi',t)|^2 = I_0(r',\varphi') + U_0^*(r',\varphi')$$
$$\times \Delta U(r',\varphi',t)U_0(r',\varphi')\Delta U^*(r',\varphi',t). \qquad (7)$$

Здесь $I_0(r',\varphi')$ — невозмущенное распределение интенсивности пробного света в дальней зоне,

$$\Delta U(r',\varphi',t) = -\frac{1}{\lambda_{\text{probe}}L}$$
$$\times \int d\varphi \int rdrU_0(r',\varphi',t)\Phi(r,\varphi,z,t)$$
$$\times \exp\left\{-\frac{ik}{2L}[r^2+r'^2-2rr'\cos(\varphi-\varphi')]\right\}. \qquad (8)$$

Для регистрации сигнала тепловой линзы обычно используется фотоприемник с установленной перед ним круглой диафрагмой. В этом случае термолинзовый сигнал будет пропорционален изменению интенсивности пробного света ΔI_{T1}, прошедшего через диафрагму,

$$\Delta I_{T1}(t) = \eta\int\limits_0^d r'dr'\int\limits_{-\pi}^{\pi} d\varphi\Big[U_0^*(r',\varphi')\Delta U(r',\varphi',t)$$
$$+ U_0(r',\varphi')\Delta U^*(r',\varphi',t)\Big], \qquad (9)$$

где η — квантовая эффективность фотоприемника, d — радиус диафрагмы.

Подставляя (8) и (9), получаем

$$\Delta I_{T1}(t) = -\eta \iint r dr d\varphi |U_0|^2 \Phi(r\varphi, t)$$

$$\times \operatorname{Im}\left\langle \omega_0^2 \left(1 + i\frac{z_1}{z_0}\right) \exp\left\{\frac{r^2}{\omega_0^2(1 + iz_1/z_0)}\right\}\right.$$

$$\left.\times \int_0^{kd/L} \exp\left\{-\frac{\xi^2}{4}\omega_0^2 \left(1 + i\frac{z_1}{z_0}\right)\right\} J_0(\xi r)\xi d\xi \right\rangle, \qquad (10)$$

где $J_0(\xi r)$ — функция Бесселя первого рода.

Подставляя в (10) выражение для $\Phi(r\varphi, t)$, окончательно получаем амплитуду термолинзового сигнала, нормированную на интенсивность зондирующего света,

$$\mathrm{TlSignal}_{\parallel} = \frac{\pi\omega_0^4}{\lambda}\frac{\partial n}{\partial T}\frac{\alpha l}{K} P_{\mathrm{pump}} \mathrm{Abs}\left(\int_0^{kd/L} \xi d\xi \exp\left\{-\frac{\xi^2\omega_0^2}{2}\right\}\right.$$

$$\times \int_0^{\infty} \frac{\lambda d\lambda}{\lambda^2 + i\Omega/\chi} \operatorname{Im}\left[I_0 \left\{\frac{\lambda\xi}{2}\omega_0^2 \left(1 - i\frac{z_1}{z_0}\right)\right\}\right.$$

$$\left.\left.\times \exp\left\{-\frac{\lambda^2}{4}\left[\frac{r_{\mathrm{pump}}^2}{2} + \omega_0^2 \left(1 - \frac{z_1}{z_0} i\right)\right]\right\}\right]\right), \qquad (11)$$

где $I_0(\xi r)$ — модифицированная функция Бесселя первого рода.

Выражение (11) фактически описывает поведение сигнала тепловой линзы в общем виде. Остается только добавить, что для получения максимального сигнала необходимо оптимизировать значения двух параметров: kd/L и z_1.

Перейдем теперь к рассмотрению регистрации тепловых возмущений фазовым методом. В этом методе дополнительный набег фазы пробного света регистрируется с помощью интерферометра, один луч которого проходит через нагретую область, а другой — вне ее. В литературе описано применение различных видов оптических интерферометров [6–8] для регистрации тепловых волн. Мы предпочитаем использовать поляризационные интерферометры [9]. К их преимуществам можно отнести высокую стабильность, высокую чувствительность и малые габариты [10]. Кроме того, в них не происходит потерь света. Распределение интенсивности света на фотоприемнике в этом случае имеет вид

$$I(r', \varphi', t) = |U(r', \varphi', t) + U_{\mathrm{ref}}(r', \varphi', t)^2|$$

$$= |U_0(r', \varphi')^2| \cos^2\frac{\delta}{2} + \frac{1}{2}\cos\frac{\delta}{2}$$

$$\times \Big(U_0'(r', \varphi')\Delta U'^*(r', \varphi', t) e^{i\delta/2}$$

$$+ \Delta U(r', \varphi', t) U'^*_0(r', \varphi') e^{i\delta/2}\Big), \qquad (12)$$

где δ — постоянная разность фаз между лучами интерферометра,

$$U'_{\mathrm{ref}}(r', \varphi) = U'_0(r', \varphi')e^{i\delta}, \qquad (13)$$

$$U'(r', \varphi') = U'_0(r', \varphi') + \Delta U'(r', \varphi', t). \qquad (14)$$

Проинтегрировав последнее слагаемое по штрихованным координатам, получим величину фототермического сигнала

$$\Delta I_{\mathrm{phsh}}(t) = \eta \sin\delta \int_{-\pi}^{\pi} d\varphi \int_0^{\infty} dr r |U_0(r, \varphi)|^2 \Phi(r, \varphi, t). \qquad (15)$$

Как и следовало ожидать, максимум сигнала достигается при разности фаз между плечами интерферометра, равной $\delta = \pi/2$. В дальнейшем будем считать это условие выполненным. После подстановки $\Phi(r, \varphi, t)$ в (15) получаем следующее выражение для амплитуды интерференционного сигнала, нормированной на интенсивность зондирующего света:

$$\mathrm{IntSignal}_{\parallel} = \frac{\omega_0^2}{8\lambda_{\mathrm{probe}}}\frac{\partial n}{\partial T}\frac{\alpha l}{K} P_{\mathrm{pump}}$$

$$\times \mathrm{Abs}\left[Ei\left(-\frac{i\Omega}{\chi}\frac{r_{\mathrm{pump}}^2 + \omega_0^2}{8}\right)\right], \qquad (16)$$

где

$$E_i(x) = \int_{-\infty}^{x} \frac{e^t}{t} dt$$

— интегральная показательная функция.

Перейдем к рассмотрению поперечного варианта (рис. 2). В этом случае распределение переменной, на частоте Ω температуры будет иметь следующий вид:

$$T_{\Omega}(x, y, z, t) = \operatorname{Re} \int_0^{\infty} \xi d\xi \frac{\alpha}{K}\frac{P_{\mathrm{pump}}}{2\pi} J_0(\xi\sqrt{y^2 + z^2})$$

$$\times e^{-\frac{\xi^2 r_{\mathrm{pump}}^2}{8}} \frac{e^{i\Omega t}}{\xi^2 + i\Omega/\chi}, \qquad (17)$$

где x, y, z — декартовы координаты.

Считая длину ячейки много большей размеров области, в которой существует интересующее нас возмущение температуры, можно записать выражение для переменной фазы зондирующего света в таком виде:

$$\Phi_{\Omega}(x, y, t) = \frac{2\pi}{\lambda_{\mathrm{probe}}}\frac{\partial n}{\partial T} \int_{-\infty}^{\infty} dz T(x, y, z, t). \qquad (18)$$

Повторяя описанную выше процедуру вычислений для поперечной конфигурации, получаем выражения для амплитуд интерференционного и термолинзового сигналов,

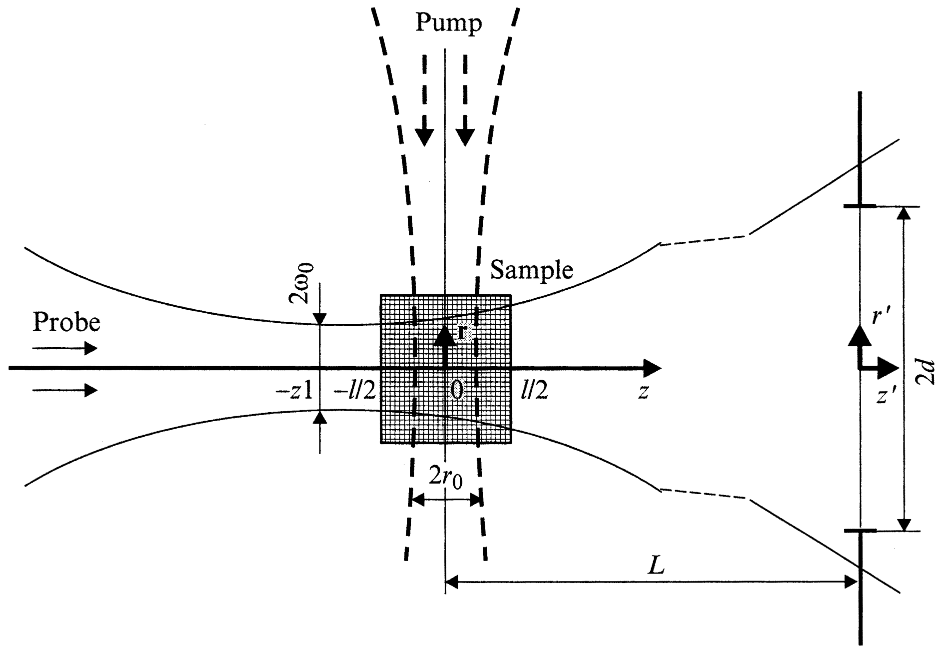

Рис. 2. Поперечная конфигурация. Возбуждающий и зондирующий пучки света распространяются перпендикулярно друг другу и пересекаются внутри образца.

нормированных на интенсивность зондирующего света,

$$\mathrm{IntSignal}_\perp = \frac{\pi^2}{2}\sqrt{\frac{\chi}{\Omega}}\frac{\omega_0^2}{\lambda_{\mathrm{probe}}}\frac{\partial n}{\partial T}\frac{\alpha l}{K}P_{\mathrm{pump}}$$

$$\times \mathrm{Abs}\left[\mathrm{Erfc}\left(\sqrt{\frac{\Omega}{\chi}\frac{r_{\mathrm{pump}}^2+\omega_0^2}{8}}e^{i\pi/4}\right)\right], \qquad (19)$$

$$\mathrm{TlSignal}_\perp = 2\pi\frac{\omega_0^4}{\lambda_{\mathrm{probe}}}\frac{\partial n}{\partial T}\frac{\alpha l}{K}P_{\mathrm{pump}}\mathrm{Abs}\left(\int\limits_0^{kd/L} dt\,\exp\right.$$

$$\times\left\{-\frac{t^2\omega_0^2}{2}\right\}t\int\limits_0^\infty\frac{dx}{x^2+i\Omega/\chi}\mathrm{Im}\left[I_0\left\{\frac{tx}{2}\omega_0^2\left(1-i\frac{z}{z_0}\right)\right\}\right.$$

$$\left.\left.\times\ \exp\left\{-\frac{x^2}{4}\left[\frac{r_0^2}{2}+\omega_0^2\left(1-\frac{z}{z_0}i\right)\right]\right\}\right]\right). \qquad (20)$$

Для сравнения чувствительности фазового (интерференционного) и термолинзового методов необходимо рассмотреть отношение

$$\left(\frac{\mathrm{IntSignal}}{\mathrm{IntNoise}}\right)\Big/\left(\frac{\mathrm{TlSignal}}{\mathrm{TlNoise}}\right).$$

Мы будем учитывать только дробные шумы пробного света. В этом случае

$$\left(\frac{\mathrm{IntSignal}}{\mathrm{IntNoise}}\right)\Big/\left(\frac{\mathrm{TlSignal}}{\mathrm{TlNoise}}\right) = \frac{\mathrm{IntSignal}}{\mathrm{TlSignal}}$$

$$\times\left(1-\exp\left(-\frac{\omega_0^2k^2d^2}{2L^2}\right)\right)^{1/2}. \qquad (21)$$

Зависимости отношения чувствительности фазового (интерференционного) и термолинзового методов качественно очень похожи в обоих рассмотренных конфигурациях. Единственное различие состоит в несколько большей крутизне кривых для поперечного варианта. Поэтому мы ограничимся рассмотрением графиков зависимости

$$\left(\frac{\mathrm{IntSignal}}{\mathrm{IntNoise}}\right)\Big/\left(\frac{\mathrm{TlSignal}}{\mathrm{TlNoise}}\right)$$

от частоты модуляции накачки и радиуса пучка накачки только для продольного варианта, а для поперечного варианта приведем графики зависимости отношения IntSignal/TlSignal от теплопроводности и радиуса зондирующего пучка.

На рис. 3 представлена зависимость отношения чувствительности интерференционного и термолинзового методов от радиуса пучка накачки для нескольких значений частоты ($f = 2\pi\Omega$) модуляции накачки. В области малых значений диаметра пучка накачки, для которых длина волны тепловой диффузии много больше r_0, отношение

$$\left(\frac{\mathrm{IntSignal}}{\mathrm{IntNoise}}\right)\Big/\left(\frac{\mathrm{TlSignal}}{\mathrm{TlNoise}}\right)$$

не зависит от r_0, поскольку источник тепла можно представить как точечный. В области больших значений r_0, для которых длина тепловой диффузии много меньше r_0, отношение

$$\left(\frac{\mathrm{IntSignal}}{\mathrm{IntNoise}}\right)\Big/\left(\frac{\mathrm{TlSignal}}{\mathrm{TlNoise}}\right)$$

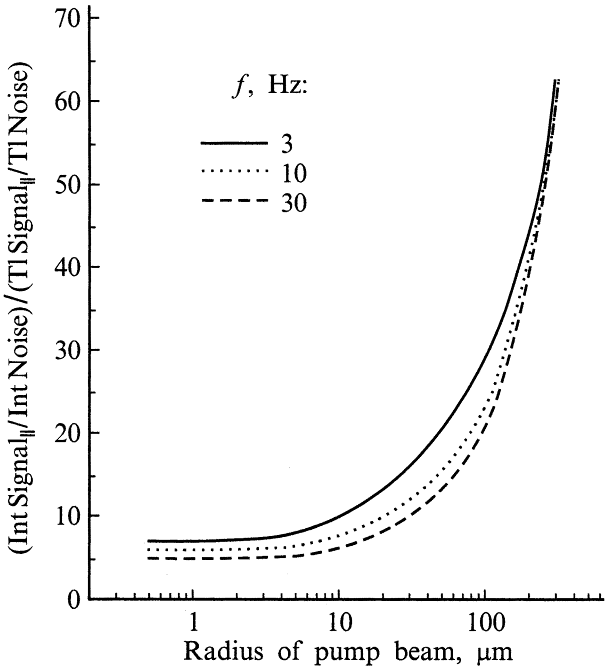

Рис. 3. Отношение чувствительности интерференционного и термолинзового методов в продольной конфигурации в зависимости от радиуса пучка накачки при $K = 1.5 \cdot 10^{-3}$ W/(cm·deg), $\rho = 0.9\,\mathrm{g/cm^{-3}}$, $c = 2\,\mathrm{J/(g \cdot deg)}$, $\omega_0 = 3\,\mu$m.

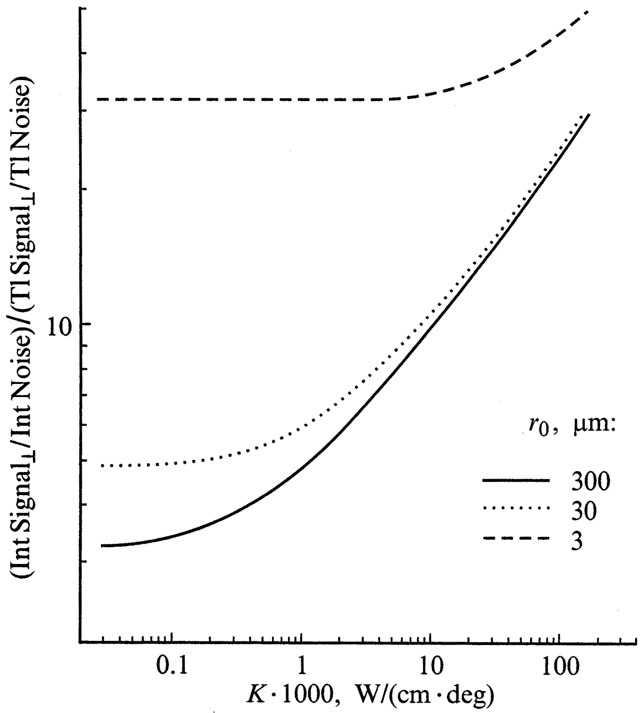

Рис. 5. Отношение чувствительности интерференционного и термолинзового методов в поперечной конфигурации в зависимости от коэффициента теплопроводности при $\rho = 0.9\,\mathrm{g/cm^{-3}}$, $c = 2\,\mathrm{J/(g \cdot deg)}$, $\omega_0 = 3\,\mu$m, $f = 10$ Hz.

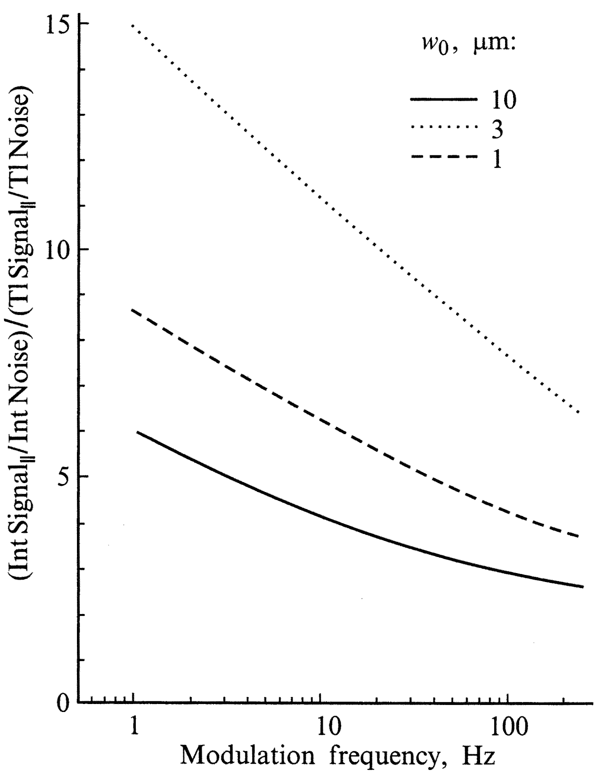

Рис. 4. Отношение чувствительности интерференционного и термолинзового методов в продольной конфигурации в зависимости от частоты модуляции накачки при $K = 0.32$ W/(cm·deg), $\rho = 0.9\,\mathrm{g/cm^{-3}}$, $c = 2\,\mathrm{J/(g \cdot deg)}$, $r_0 = 10\,\mu$m.

быстро возрастает и перестает зависеть от Ω, поскольку форма тепловых возмущений все больше повторяет форму пучка накачки.

На рис. 4 приведены зависимости отношения чувствительности интерференционного и термолинзового методов в зависимости от частоты модуляции накачки для различных радиусов зондирующего пучка. Из них видно, что с уменьшением частоты интерференционный сигнал растет быстрее, чем термолинзовый. Это особенно заметно для малых радиусов зондирующего пучка. Качественно это можно объяснить тем, что уменьшение частоты модуляции приводит к росту объема нагретой области и более быстрому росту абсолютных значений температуры по сравнению с ростом ее производных по координатам, ответственных за формирование термолинзового сигнала.

Подобным же образом можно объяснить и более быстрый рост интерференционного сигнала при увеличении теплопроводности образца рис. 5.

На рис. 6 приведены зависимости отношения интерферометрического и термолинзового сигналов от радиуса пучка зондирующего света для различных частот модуляции. В соответствии с ними по мере уменьшения радиуса пучка зондирующего света наблюдается более быстрый рост интерферометрического сигнала. Качественно это объясняется тем, что у тепловой линзы, как у линзы вообще, больше работают края, а изменение фазы зондирующего света максимально в центре нагретой области.

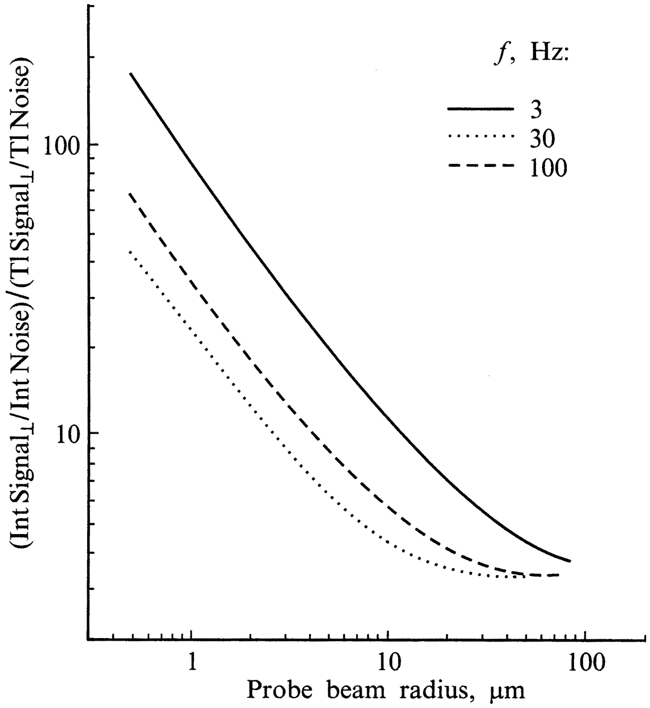

Рис. 6. Отношение чувствительности интерференционного и термолинзового методов в поперечной конфигурации в зависимости от радиуса зондирующего пучка при $K = 1.5 \cdot 10^{-3}$ W/(cm·deg), $\rho = 0.9$ g/cm^{-3}, $c = 2$ J/(g· deg), $r_0 = 10\,\mu$m.

В том случае, когда преобладают технические шумы, величина которых пропорциональна интенсивности пробного, отношение

$$\left(\frac{\text{IntSignal}}{\text{IntNoise}}\right) \Big/ \left(\frac{\text{TlSignal}}{\text{TlNoise}}\right) = \frac{\text{IntSignal}}{\text{TlSignal}} \times \left(1 - \exp\left(-\frac{\omega_0^2 k^2 d^2}{2L^2}\right)\right)$$

и характер рассмотренных выше зависимостей принципиально не изменяется.

Во всех исследованных случаях чувствительность интерференционного метода оказалась большей по сравнению с термолинзовым. Таким образом, было показано, что фазовый (интерференционный) метод регистрации тепловых волн обладает преимуществом в чувствительности, особенно значительным в тех случаях, когда размеры области переменных возмущений температуры превышают радиус пучка зондирующего света.

Список литературы

[1] *Bicanic D.* Photoacoustic and Photothermal Phenomena III. Berlin: Springer, 1992.

[2] *Mandelis A.* Principles & Perspectives of Photothermal and Photoacoustic Phenomena, New York: Elsevier, 1992.

[3] *Бражник П.К., Новиков М.А.* // Опт. и спектр. 1991. Т. 70. № 2. С. 453.

[4] *Глазов А.Л., Муратиков К.Л.* // ЖТФ. 1991. Т. 61. Вып. 11. С. 187–196.

[5] *Ярив А.* Квантовая электроника. М.: Сов. Радио, 1980. 488 с.

[6] *Glasov A.L., Muratikov K.L.* // Int. J. Optoelectronics. 1989. Vol. 4. N 3. P. 589–597.

[7] *Бражник П.К., Новиков М.А., Пушкин А.А.* // Опт. и спектр. 1990. Т. 68. № 3. С. 631–635.

[8] *Faubel W., Seidel B.S., Ache H.J.* // Opt. Eng. 1996. Vol. 35. (12). P. 3555–3561.

[9] *Лукьянов А.Ю., Владыкин Г.Б., Аратскова А.А.* и др. // Журнал физ. химии. 1997. Т. 71. № 8. С. 1497.

[10] *Francon M., Mallick S.* Polarization Interferometers, Application in Microscopy and Macroscopy. New York: Academic Press, 1971.