

# 一种利用透射式太赫兹时域光谱技术精确提取样品折射率的方法

陈立群<sup>1,2</sup>, 高飞<sup>1</sup>, 龚小竞<sup>1</sup>, 杨珺<sup>1</sup>,  
鲁远甫<sup>1</sup>, 刘文权<sup>1</sup>, 冯广智<sup>1</sup>, 张艳东<sup>1</sup>, 金雷<sup>1\*</sup> 于文龙<sup>1</sup>

(1. 中国科学院深圳先进技术研究院, 广东 深圳 518055;

2. 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

**摘要:**运用透射式太赫兹时域光谱技术提取可区分回波样品折射率,主要依靠测得信号的相位差计算得到.具体有两种方法:一是利用参考脉冲和太赫兹波第一次透过样品的脉冲信号,二是利用太赫兹波第一次透过样品的脉冲信号和经样品内部反射两次后的第二个透射信号.实际操作中入射光束与样品表面法线存在夹角,该夹角不易测量,计算时通常忽略,这会最终引起折射率的测量误差,且该误差与选用的折射率提取方法有关.在分析两种方法因夹角引起误差的基础上,提出一种全新的折射率修正方法,该方法能从理论上消除夹角引起的误差,同时实验验证了该方法的有效性.

**关键词:**太赫兹;折射率;时域光谱

中图分类号:O433 文献标识码:A

## Extraction of refractive indices of materials through transmission terahertz time-domain spectroscopy

CHEN Li-Qun<sup>1,2</sup>, GAO Fei<sup>1</sup>, GONG Xiao-Jing<sup>1</sup>, YANG Jun<sup>1</sup>,  
LU Yuan-Pu<sup>1</sup>, LIU Wen-Quan<sup>1</sup>, FENG Guang-Zhi<sup>1</sup>, ZHANG Yan-Dong<sup>1</sup>, JIN Lei<sup>1\*</sup>, YU Wen-Long<sup>1</sup>

(1. Shenzhen Institutes of Advanced Technology, Chinese Academy of Sciences, Shenzhen 518055, China;

2. Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

**Abstract:** For samples with distinguishable echoes in detected transmission pulses, we mainly use the phase difference between the detected pulses to extract their refraction indices by transmission terahertz time-domain spectroscopy. Specifically, there are two methods. The first one requires the reference pulse and the first terahertz pulse transmitted through the sample; the second one requires the terahertz pulse transmitted through the sample and the second transmitted pulse after two reflections in the sample. However, in practice, there exists an angle between the incident terahertz beam and the surface normal of the sample. Yet, this angle is not easy to measure. So, in calculation we usually ignore this angle, which often causes error in the extracted refractive indices. In addition, this error is related with the selected method. In this article, after analyzing deviations of the refractive indices resulting from the angle when using the two methods, we propose a method to correct the extracting refractive indices. Our method could theoretically eliminate errors that are caused by the angle. Experiments further prove that this correction method is effective.

**Key words:** terahertz; index of refraction; time-domain spectroscopy

**PACS:** 07.57.Pt

## 引言

太赫兹时域光谱 (THz-TDS) 技术是研究样品在远红外频率范围内特性的常用方法,该方法对研究样品的光学性能和结构性质具有重要意义<sup>[1-2]</sup>. THz-TDS 系统按实验装置分为透射型、反射型、差分型、啁啾展宽型和集成太赫兹共振器型<sup>[3]</sup>,其中透射式 THz-TDS 系统因光路简单是常用的实验装置,它可有效测试固体、液体、气体样品<sup>[4-6]</sup>. 在透射式光谱测试中必须保证样品前后表面平行,作为实验前的样品准备,通常将块状样品打磨至前后表面平行,将固体粉末研磨成微小颗粒后压片<sup>[7]</sup>,将液体或气体样品盛放在前后表面平行的液体池或气体池中<sup>[8]</sup>.

利用透射式 THz-TDS 技术获取样品折射率时,首先测量经自由空间的太赫兹脉冲的时域波形,称为参考波形或参考脉冲. 其次测量太赫兹脉冲经样品之后的时域波形,称为信号波形<sup>[9-10]</sup>. 对于可区分回波的样品,可以在信号波形中分辨出两个或两个以上的脉冲<sup>[11-12]</sup>,计算折射率可以有两种方法:一是利用参考脉冲和太赫兹波第一次透过样品的脉冲信号,二是利用太赫兹波第一次透过样品的脉冲信号和经样品内部反射两次后的第二个透射信号. 用透射式 THz-TDS 测试时通常将样品垂直放置于光路中,实际操作中入射光束与样品表面法线不可避免的存在夹角,该夹角不易测量,计算时通常忽略,这会最终引起折射率的测量误差,且该误差与选用的折射率提取方法有关. 国内外的科研工作者分析了采用方法一时忽略夹角引起的折射率测量误差,Withayachumnankul 等人给出了该误差的表达式,说明误差与样品厚度无关<sup>[13]</sup>, Xinlong Xu 等人给出该误差随夹角变化曲线,曲线形状近似于抛物线<sup>[14]</sup>.

至今还没有关于如何减小夹角引起的折射率测量误差的研究. 本文针对可区分回波样品,分析用两种方法计算时因夹角引起的误差. 在此基础上,提出一种折射率修正方法,该方法能理论上消除夹角引起的误差. 用高阻硅进行实验,结果证明运用修正方法得到的折射率修正值接近真实值,该修正方法有效.

## 1 可区分回波样品

为表述方便,将通过自由空间的太赫兹脉冲的时域波形记为 pulse1; 将太赫兹波第一次透过样品的脉冲信号记为 pulse2; 将太赫兹波经样品内部反

射两次后的第二个透射信号记为 pulse3.

如图 1 所示, pulse3 在样品内部经历两次反射,较 pulse2 晚到达探测端, pulse2 和 pulse3 之前存在时间差. 若样品折射率小、厚度薄,或是样品本身的色散性质使得脉冲展宽,就可能出现 pulse2 与 pulse3 叠加在一起的情形,此时无法从时间上辨别出两个信号. 而对于另外一些样品,可从时间上将两个信号区分开,文中将这些样品称为可区分回波样品,此种样品也正是所研究的对象.

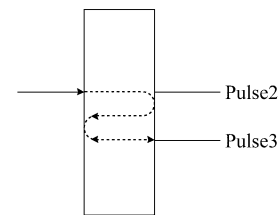


图 1 太赫兹脉冲经过样品后透射和经样品内部反射两次后透射的示意图

Fig. 1 Schematic illustration of two terahertz pulses, one transmits directly through the sample and another transmits after two reflections in the sample

## 2 夹角引起折射率测量误差的理论分析

### 2.1 折射率测量值与真实值的关系

实际操作中入射光束与样品表面法线存在夹角,下面首先推导计入夹角情况下折射率的表达式,其次分析忽略夹角得到的折射率测量值,最后找出折射率测量值与真实值的关系.

#### 2.1.1 运用方法一时折射率的表达式

如图 2 所示,  $\theta_i$  为入射光束与样品表面法线的夹角,  $\theta_t$  为折射角,对于某一特定频率而言,样品的折射率为定值  $n$ , 取空气折射率为 1. 根据斯涅耳 (Snell) 定律:

$$n \sin \theta_t = \sin \theta_i, \quad (1)$$

pulse2 与 pulse3 在该频率下的相位差为:

$$\begin{aligned} \phi_2 - \phi_1 &= (2\pi/\lambda) [n \times ab + bc - ad] \\ &= (2\pi/\lambda) d [n \cos \theta_t - \cos \theta_i], \end{aligned} \quad (2)$$

其中,  $d$  为平板样品厚度,  $\lambda$  为太赫兹在真空中的波数.

由此得到该频率下样品折射率的表达式:

$$n = \lambda(\phi_2 - \phi_1) / (2\pi d \cos \theta_t) + \cos \theta_t / \cos \theta_i. \quad (3)$$

#### 2.2.2 运用方法二时折射率的表达式

如图 3 所示, pulse2 与 pulse3 在某特定频率下的相位差为:

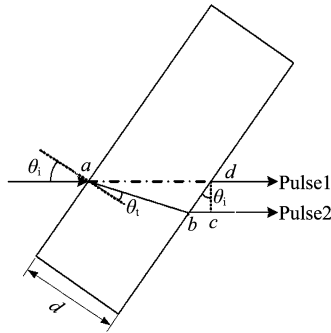


图2 pulse1 和 pulse2 光路示意图  
Fig. 2 Schematic illustration of the light paths of pulse1 and pulse2

$$\phi_3 - \phi_2 = (2\pi/\lambda) [n(ab + be + ef) - (n \times ab + bc)] = (4\pi/\lambda) nd \cos\theta_i \quad (4)$$

由此该频率下样品折射率  $n$  的表达式为:

$$n = \lambda(\phi_3 - \phi_2) / (4\pi d \cos\theta_i) \quad (5)$$

式(3)、式(5)表明,折射率不仅与两个脉冲经傅里叶变换后的相位差、样品厚度、该频率对应的波长有关,还与夹角、折射角有关.实际测试过程中夹角较小且不易测得,计算时一般忽略夹角得到折射率测量值,记为  $n_{21}$ 、 $n_{32}$ .取夹角  $\theta_i$  为 0,由式(3)得到:

$$n_{21} = \lambda(\phi_2 - \phi_1) / 2\pi d + 1 \quad (6)$$

由式(5)得到:

$$n_{32} = \lambda(\phi_3 - \phi_2) / 4\pi d \quad (7)$$

联立(式3)和式(6)得到:

$$n_{21} = n \cos\theta_i - \cos\theta_i + 1 \quad (8)$$

联立式(5)和式(7)得到:

$$n_{32} = n \cos\theta_i \quad (9)$$

式(8)、式(9)建立了用两种方法提取折射率时测量值和真实值之间的联系.

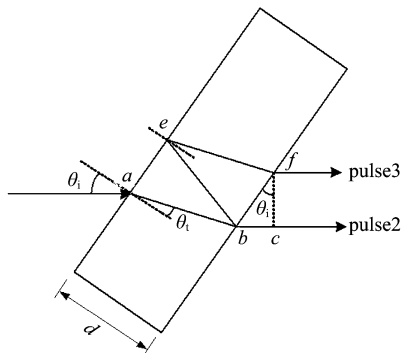


图3 pulse2 和 pulse3 光路示意图  
Fig. 3 Schematic illustration of the light paths of pulse2 and pulse3

### 2.2 夹角引起的折射率测量误差分析

夹角引起的折射率测量误差即为忽略夹角情况下折射率测量值与真实值的偏差,用两种方法得到折射率测量值的相对误差分别为  $|n_{21} - n|/n$ 、 $|n_{32} - n|/n$ .

$$|n_{21} - n|/n = |n \cos\theta_i - \cos\theta_i + 1 - n|/n \quad (10)$$

$$|n_{32} - n|/n = |1 - \cos\theta_i| \quad (11)$$

高阻硅是常见的用于太赫兹波段的材料,它在 0.5 ~ 2.5 THz 频段内色散很小<sup>[12]</sup>,在该频段折射率均值为  $n = 3.41748$ .由于实际测量中还存在其他误差来源,此处为研究夹角引起的误差,不考虑其它的误差.图4为用两种方法得到的高阻硅折射率测量误差随夹角变化的模拟曲线,夹角  $5^\circ$  时,理论上用方法一计算,相对误差为 0.078823%,用方法二计算,相对误差为 0.032525%.

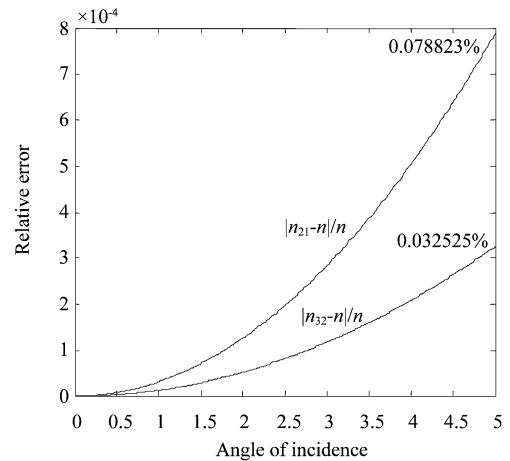


图4 高阻硅折射率测量值误差随夹角变化的模拟曲线  
Fig. 4 Influence of the angle on the relative error of the refractive index of high-resistivity silicon

### 3 夹角引起的折射率测量误差修正

#### 3.1 修正理论

式(8)、式(9)表明折射率测量值  $n_{21}$ 、 $n_{32}$  与真实值  $n$  以及夹角、折射角有关,式(1)斯涅耳(Snell)定律确立的夹角与折射角的关系,联立三个式子解得:

$$n = \sqrt{2n_{21} + 2n_{21}n_{32} - 2n_{32} - n_{21}^2} \quad (12)$$

式(12)指出了一种折射率的提取方法.从式中可以得出,折射率  $n$  仅与测量值  $n_{21}$ 、 $n_{32}$  相关,结合式(6)、式(7),可以看出折射率  $n$  与夹角无关.因此从理论上分析,该提取方法可以完全消除夹角引入的折射率误差.在不考虑其他误差的前提下,理论上

该修正值即为折射率的真实值,且无论夹角多大该修正理论都适用.

### 3.2 验证实验

在用透射式太赫兹时域光谱技术测试样品折射率时,发射器噪声、探测器噪声、激光器输出起伏、背景噪声、夹角等因素<sup>[15-16]</sup>都会对测试精度造成影响.修正了夹角引起的误差能否显著提高测试精度,取决于夹角引起的误差占总误差的比重是否较大.此处为研究折射率修正效果,特意设置一个较大的夹角,使得夹角引起的误差在总误差中占较大比重,以突出修正效果.

进行如下一组实验:先测量经自由空间的太赫兹脉冲的参考时域波形,接着将高阻硅倾斜置于透射式 THz-TDS 发射端至接收端的光路中,入射光束与样品表面法线的夹角未知,但目测夹角较大,测出太赫兹脉冲经过样品之后的时域波形.整个测试是在氮气环境中进行.为了减小水蒸气等噪声的影响,用小波变换对采集到的信号进行预处理<sup>[17]</sup>.因实验部分意在验证修正的效果,而通常的测量中无法测出具体夹角,所以在实验中没有测量夹角具体值.

研究使用的高阻硅样品从上海君合电子材料有限公司购买,晶向  $\langle 100 \rangle$ ,电阻率  $> 5 \text{ k}\Omega \cdot \text{cm}$ ,厚度  $350 \mu\text{m}$ ,直径  $100 \text{ mm}$ ,双面抛光.

测得的参考和样品时域波形如图 5 所示, pulse1 为参考脉冲, pulse2、pulse3 分别表示太赫兹波第一次透过样品的脉冲信号和经样品内部反射两次后的第二个透射信号.

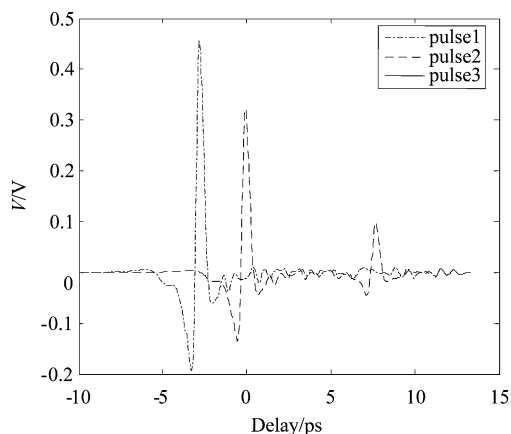


图 5 测得的三个脉冲: pulse1、pulse2、pulse3

Fig. 5 Measured the three pulses: pulse1, pulse2, pulse3

为分析实验得到的数据,以 Jianming Dai 等人测得的高阻硅的折射率为参考<sup>[12]</sup>,图 6 为高阻硅折

射率参考值.高阻硅的折射率从  $0.5 \text{ THz}$  的  $3.41745$  增加到  $2.5 \text{ THz}$  的  $3.41751$ ,折射率在该频段的算术平均值  $n = 3.41748$ .

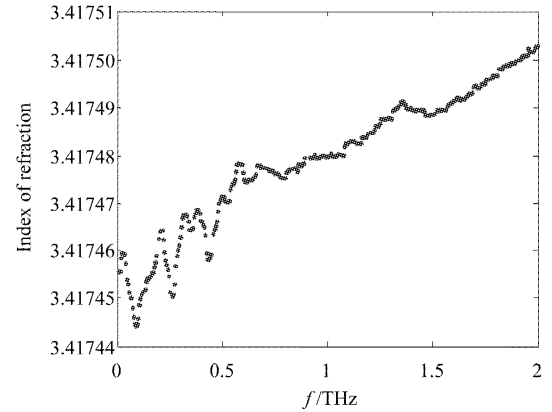


图 6 高阻硅折射率的参考值

Fig. 6 The reference value of refractive index of high-resistivity silicon

图 7 表示出测量值、修正值以及参考值,  $n'_{21}$  和  $n'_{32}$  为折射率实际测量值,  $n'$  为折射率修正值,  $n$  为折射率的参考值.将  $n'_{21}$ 、 $n'_{32}$  和  $n'$  在该频段求算术平均,平均值在图中用三条虚线标出.对比三种方法得到的曲线与参考值曲线,可看出,参考值的波动(高阻硅的色散)远小于三种方法的差异度,因此是可以参考值在  $0.5 \sim 2.5 \text{ THz}$  的算术平均值  $3.41748$  为参考,计算得到估计误差.

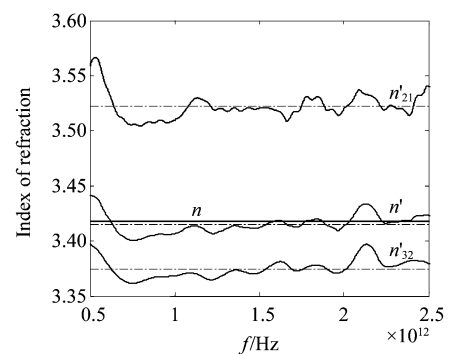


图 7 高阻硅折射率的实际测量值(虚线表示平均值)、修正值(虚线表示平均值)以及参考值(粗实线)

Fig. 7 The measurements (show average value as a dotted line), correction value (show average value as a dotted line) and reference value (heavy line) of refractive index of high-resistivity silicon

如表一所示,因入射光束与样品表面法线的夹角较大,测量值  $n'_{21}$ 、 $n'_{32}$  与真实值相差较大,估计误差分别为  $3.054\%$ 、 $1.267\%$ ,而由测量值计算得出

的修正值 $\bar{n}'$ 与真实值很接近,估计误差仅为 0.088%,比前两种方法小两个数量级,表明该修正方法能有效减小夹角引起的误差.

表 1 折射率测量值、修正值及它们的估计误差  
Table 1 Measurements, correction values of refractive index and their estimated errors

	实验得出的数据	折射率参考值	估计误差
折射率实际测量值 $n'_{21}$	3.52184		3.054%
折射率实际测量值 $n'_{32}$	3.37419	3.41748	1.267%
折射率实际修正值 $\bar{n}'$	3.41448		0.088%

#### 4 结论

用透射式 THz-TDS 测试时通常将样品垂直放置于光路中,实际操作中入射光束与样品表面法线不可避免的存在夹角,计算时通常忽略该夹角,这会给测量结果带来误差.为减小此误差,更精确提取折射率,本文在分析运用两种方法计算因夹角引起误差的基础上,提出了一种折射率修正方法,理论上该方法能消除夹角带来的误差.

为了验证该方法对折射率测量误差的修正效果,用高阻硅倾斜放置于光路中进行实验,运用两种方法得到两组折射率测量值,运用修正方法得出折射率修正值,结果表明修正值的估计误差比测量值的估计误差小约两个数量级,修正值接近真实值.

实验结果证明了该修正方法的有效性,这就意味着在用透射式 THz-TDS 测试可区分回波样品时,可以运用该方法减小夹角带来的误差,更准确地获得样品折射率.这对精确测试样品折射率具有一定的作用,也对减小样品折射率测量误差的方法进行了补充.

#### REFERENCES

- [1] Naftaly M, Miles R E. Terahertz time-domain spectroscopy for material characterization[J]. *Proceedings of the IEEE*, 2007, **95**(8):1658-1665.
- [2] Beard M C, Turner G M, Schmuttenmaer C A. Terahertz spectroscopy[J]. *J. Phys. Chem. B*, 2002, **106**(29):7146-7159.
- [3] MU Kai-Jun. Terahertz spectroscopic investigation of explosives[D]. Beijing:Capital Normal University, 2008.
- (牧凯军. 爆炸物的太赫兹光谱研究[D]. 北京:首都师范大学), 2008.
- [4] Theuer M, Harsha S S, Molter D, et al. Terahertz time-domain spectroscopy of gases, liquids, and solids [J]. *Chemphyschem*. 2011, **12**(15):2695-2705.
- [5] Hangyo M, Tani M, Nagashima T. Terahertz time-domain spectroscopy of solids: A review [J]. *International Journal of Infrared and Millimeter Waves*, 2005, **26**(12):1661-1690.
- [6] Mounaix P, Moustakim M, Boiteux S L, et al. Far-infrared optical constants of CO<sub>2</sub> near the critical point measured by terahertz spectroscopy [J]. *Applied Physics Letters*, 2003, **83**(24):5095-5097.
- [7] Markelz A G, Roitberg A, Heilweil E J. Pulsed terahertz spectroscopy of DNA, bovine serum albumin and collagen between 0.1 and 2.0 THz [J]. *Chemical Physics Letters*, 1999, **320**(2000):42-48.
- [8] Li J S, Li X J. Determination principal component content of seed oils by THz-TDS [J]. *Chemical Physics Letters*, 2009, **476**(1-3):92-96.
- [9] Jepsen P U, Cooke D G, Koch M. Terahertz spectroscopy and imaging - modern techniques and applications [J]. *Laser & Photonics Review*, 2011, **5**(1):124-166.
- [10] Duvillaret L, Garet F, Coutaz J L. A reliable method for extraction of material parameters in terahertz time-domain spectroscopy [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 1996, **2**(3):739-746.
- [11] Duvillaret L, Garet F, Coutaz J L. Highly precise determination of optical constants and sample thickness in terahertz time-domain spectroscopy [J]. *Applied Optics*, 1999, **38**(2):409-412.
- [12] Dai J M, Zhang J Q, Zhang W L, et al. Terahertz time-domain spectroscopy characterization of the far-infrared absorption and index of refraction of high-resistivity, float-zone silicon [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2004, **21**(7):1379-1386.
- [13] Withayachumnankul W, Fischer B M, Lin H, et al. Uncertainty in terahertz time-domain spectroscopy measurement [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2008, **25**(6):1059-1072.
- [14] Xu X L, Wang X M, Wang L. Deviation of optical constants extracted in terahertz transmission spectroscopy [J]. *Applied Optics*, 2006, **45**(4):648-652.
- [15] Xu J Z, Yuan T, Mickan S, et al. Limit of Spectral Resolution in Terahertz Time-Domain Spectroscopy [J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2003, **20**(8):1266-1268.
- [16] Duvillaret L, Garet F, Coutaz J L. Influence of noise on the characterization of materials by terahertz time-domain spectroscopy [J]. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2000, **17**(3):452-461.
- [17] Ferguson B, Abbott D. Wavelet de-noising of optical terahertz pulse imaging data [J]. *Fluctuation and Noise Letters*, 2001, **1**(2):L65-L69.