

利用太赫兹时域光谱同时确定样品厚度和折射率

寇 宽 赵国忠 刘 英 申彦春

首都师范大学物理系, 北京 100048

摘要 太赫兹时域光谱(THz-TDS)技术给人们提供了一种快速和准确地确定材料在太赫兹波段光学参数的工具。由于材料的厚度对其折射率的提取精度影响很大,而材料的厚度通常不能够准确地测量,为了避免测量厚度误差给确定光学参数结果带来的影响,发展能够同时确定样品的厚度和折射率的方法至关重要。由于材料内部的往返反射信号较弱,对 Duvillaret 等提出的方法在计算频段和迭代算法上进行了一些改进,使得计算结果更加准确,操作更加方便、快捷。并对两种典型材料聚乙烯和硅片的厚度和折射率进行了提取,以验证这种方法的有效性。

关键词 光谱学; 太赫兹; 时域光谱; 样品厚度; 折射率

中图分类号 0433.4 **文献标识码** A

doi: 10.3788/CJL201542.0815001

Simultaneously Determinations of Sample Thickness and Refractive Index by Terahertz Time-Domain Spectroscopy

Kou Kuan Zhao Guozhong Liu Ying Shen Yanchun

Department of Physics, Capital Normal University, Beijing 100048, China

Abstract Terahertz time-domain spectroscopy provides us a powerful tool to carry out a fast and accurate measurement of optical constants of materials in terahertz range. The thickness determination of sample has a large influence on extracting the refractive index of materials. At the same time, the thickness of sample is generally difficult to be accurately measured. In order to avoid the influence from the measurement error of sample thickness on the determined refractive index, it is useful to develop a method which simultaneously determines the thickness and refractive index of sample. Due to the roundtrip reflected signal is weaker, the method presented by Duvillaret from the aspects of calculated frequency range and iterative algorithm is improved, making the calculated results more accurate and the operation more convenient. The thickness and refractive index of polyethylene and silicon wafer are determined as an example so that to verify the effectiveness of this method.

Key words spectroscopy; terahertz; time-domain spectroscopy; sample thickness; refractive index

OCIS codes 300.6270; 300.6500; 160.4760

1 引 言

太赫兹时域光谱可以在一个很宽的频率范围快速确定材料的光学参数。人们已经利用太赫兹时域光谱对电介质^[1], 半导体^[2], 液体^[3], 超导体^[4]进行了研究。在提取材料光学参数的方法上, Duvillaret 等^[5]做了基础性的工作, 在此基础上人们把关注的重点转移到如何使得提取的光学参数更加准确。Duvillaret 等^[6]证明了材料的厚度信息对光学参数提取的准确性影响很大, 这就需要对同时确定材料的厚度和光学参数的算法作进一步的研究。

在优化计算材料厚度和光学参数的提取算法方面, 几个研究小组已经做出了一些创造性的工作^[6-10]。Duvillaret 等^[6]提出利用样品的透射(主)脉冲和样品内部的第一次反射脉冲(回波)分别计算样品的折射率, 通

收稿日期: 2015-01-13; 收到修改稿日期: 2015-04-04

基金项目: 国家自然科学基金(50971094, 61171051)、北京市自然科学基金和北京市教育委员会科技计划重点项目(KZ201310028032)

作者简介: 寇 宽(1989—), 男, 硕士研究生, 主要从事太赫兹光谱方面的研究。E-mail: koukuanxyz@163.com

导师简介: 赵国忠(1964—), 男, 博士, 教授, 主要从事太赫兹光谱与成像、光电功能材料和光电子学等方面的研究。

E-mail: guozhong-zhao@mail.cnu.edu.cn

过比较两者得到的折射率差值来同时确定样品的厚度和光学参数,但是在他们的工作中没有考虑样品回波的有效频段与主脉冲的有效频段不一致对材料光学参数提取的影响,所得结果不够准确。Dorney等^[7]通过计算理论传输函数与实验传输函数之间的偏差,能够同时确定材料的厚度和光学参数。Pupeza等^[8]在此基础上提出了空间变化移动平均滤波(SVMAF)的方法,为实验传输函数设置可信区间,使得提取的材料厚度和光学参数更准确,但是他们的方法在实际操作上不够方便、快捷,因而同时提取材料厚度和光学参数的方法仍有必要作进一步的改进和优化。

首先对Duvillaret等提出的算法进行分析,然后对其算法在计算频段和迭代算法上进行一些改进,使其在计算上更加准确,在操作上更加方便,最后通过实例说明所改进方法的有效性。

2 材料参数的提取

2.1 理论方法

在太赫兹时域光谱中,通常需要记录在自由空间传播和通过样品的太赫兹时域脉冲,再将两次测量的时域脉冲进行快速傅里叶变换得到相应的频域谱,用样品的频域谱与自由空间的参考频谱进行比较,得到样品在频域上的复透射函数。将实验测量和理论分析的复透射函数作一个比较,利用数值方法就可以提取样品的复折射率,进而得到样品的其他光学参数。

在进行材料光学参数提取之前,首先假设所考虑的样品满足两点基本的要求:

1) 所测样品对太赫兹波的吸收较弱,且其折射率较大,这样就可以测到样品的透射主脉冲和多次反射回波信号;

2) 样品为光学厚样品,使得太赫兹波在样品内部的第一次反射(echo 1)和主峰(echo 0)在时域上可以很好地分离。

如图1所示,将通过样品的太赫兹信号作为样品信号 $E_{\text{sam}}(t)$,将通过自由空间的太赫兹信号作为参考信号 $E_{\text{ref}}(t)$,将两者进行快速傅里叶变换分别得到 $E_{\text{sam}}(\omega)$ 和 $E_{\text{ref}}(\omega)$,从而得到样品的复透射函数 $T(\omega) = \frac{E_{\text{sam}}(\omega)}{E_{\text{ref}}(\omega)}$,这个复透射函数中包含了样品的主峰和样品内多次反射的信号,经过变换可以得到样品主峰和在样品中多次反射信号分别对应的复透射函数^[6]:

$$T_p(\omega) = \frac{4\tilde{n}_0(\tilde{n}_0 - 1)^{2p}}{(\tilde{n}_0 + 1)^{2p+2}} \times [\exp(-i\tilde{n}_0\omega L_0/c)]^{2p+1} \exp(i\omega L_0/c) = \rho_p(\omega) \exp[-i\phi_p(\omega)], \quad (1)$$

式中 p 代表第 p 个回波(echo p), $p=0$ 代表样品的主峰, $\tilde{n}_0 = n_0 - i\kappa_0$ 是样品的复折射率, L_0 是样品的厚度, ω 是角频率, c 是真空中光速。从(1)式可以得到 $T_p(\omega)$ 的模量和幅角:

$$\rho_p(\omega) = 4(n_0^2 + \kappa_0^2)^{p/2} \frac{[(n_0 - 1)^2 + \kappa_0^2]^p}{[(n_0 + 1)^2 + \kappa_0^2]^{p+1}} \times \exp[-(2p+1)\kappa_0 \cdot \omega L_0/c], \quad (2)$$

$$\phi_p(\omega) = \frac{[(2p+1)n_0 - 1]\omega L_0}{c} + 2p \arctan\left(\frac{2\kappa_0}{n_0^2 + \kappa_0^2 - 1}\right) + \arctan\left[\frac{\kappa_0}{n_0(n_0 + 1) + \kappa_0^2}\right]. \quad (3)$$

在弱吸收近似 ($\kappa_0/n_0 \ll 1$) 的条件下,(3)式可以简化为:

$$\phi_p(\omega) \cong [(2p+1)n_0 - 1](\omega L_0/c), \quad (4)$$

用不同的回波去计算样品的折射率,因为折射率是样品的固有属性,所以无论用哪个回波计算的折射率都应该是一样的,如果有差别就说明输入的厚度是不准确的。从文献[6]中可以知道不同回波提取的折射率的差值可以表示为:

$$n[p] - n[q] \cong \frac{2(q-p)}{(2p+1)(2q+1)} \frac{\Delta L}{L_0}, \quad (5)$$

式中 $n[p]$ 和 $n[q]$ 分别对应第 p 个和第 q 个回波提取的折射率, L_0 是样品的准确厚度, ΔL 是输入的厚度与样品准确厚度的差值,可见, ΔL 与 $n[p] - n[q]$ 近似成正比,当输入的厚度值为样品的准确厚度时 $\Delta L = 0$, $n[p] - n[q] = 0$ 。 q 和 p 的差值越大,提取的折射率越准确,但考虑到样品回波的信噪比问题,一般取 $p = 0$,

$q = 1$ 是最好的折中。在进行数值计算时让折射率误差^[6]

$$M(L) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |n_p(\omega_i, L) - n_q(\omega_i, L)|, \quad (6)$$

尽可能地小,对应 $M(L)$ 最小值的 L 就是样品的准确厚度。

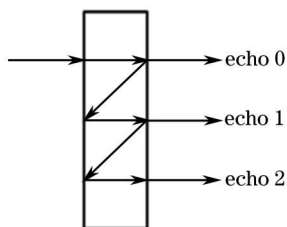


图1 太赫兹波通过平整且均匀的样品示意图

Fig.1 Schematic diagram of THz wave through a smooth and homogeneous sample

2.2 对以上方法的改进

对上述方法做了两点改进:

1) 在进行数值计算时,存在一个对 N 的取值问题,即计算 $M(L)$ 所选的频段问题,用常规的方法计算折射率时要看太赫兹系统的有效频段,但是在计算 $M(L)$ 时所选择的频段不一定是系统的有效频段,而是取样品的主峰和样品的第一个回波共同的有效频段,这个共同的有效频段有时在透射频域谱上不易观察到,因为有些样品的第一个回波的频域谱特别弱,只有在相位谱上才能准确的判断;

2) 在计算误差时通常采用的方法是先用千分尺粗略测定一下样品的厚度,然后以这个厚度为中心,在这个厚度的两边各取一定的变化量来迭代计算准确的厚度。如果手边没有测量工具,或者样品有毒、易碎、无法直接测量,就无法相对准确地对样品厚度进行一个大概估计,这时可以进行以下操作:首先可以随意输入一个厚度 L 计算其对应的误差 $M(L)$,然后再计算 $L + \Delta L$ 对应的误差 $M(L + \Delta L)$,对比 $M(L)$ 和 $M(L + \Delta L)$,如果 $M(L) > M(L + \Delta L)$ 说明 $L + \Delta L$ 更接近准确厚度,厚度应该继续增大,直到误差 M 不再减小,所得的厚度就是样品的准确厚度,这种方法在编程上比较容易实现。

3 实 验

3.1 样品和实验装置

选取两个典型的样品进行测试验证,分别采用传统压片方法压制的聚乙烯薄片和硅片。实验中采用的

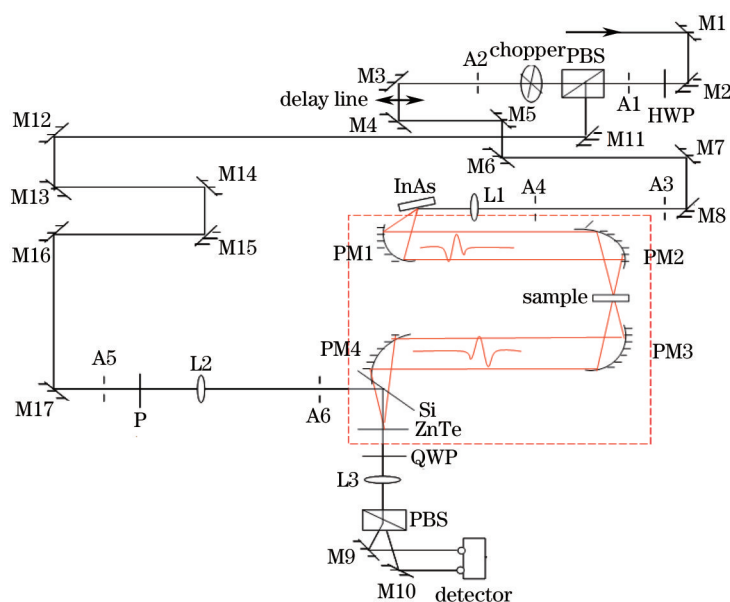


图2 THz-TDS系统光路示意图

Fig.2 Schematic diagram of terahertz time-domain spectroscopy

THz-TDS 系统光路示意图如图 2 所示,由钛蓝宝石激光器产生中心波长为 800 nm,脉宽为 100 fs,重复频率为 82 MHz 的飞秒脉冲激光。在通过偏振分束镜后分为两束,一束光作为抽运光,通过电动平移台经透镜会聚在 InAs 晶体上,产生 THz 脉冲,经抛物面镜准直后会聚到样品上,带有样品信息的 THz 波再经过抛物面镜收集,准直后聚焦到 THz 探测晶体 ZnTe 上,另一束飞秒光作为探测光同时到达 ZnTe 晶体,太赫兹电场通过 ZnTe 晶体调制探测光的偏振态,使得探测光通过沃拉斯顿棱镜后的偏振分束比发生变化,从而被差分探测器检测。为了避免水蒸气对 THz 波的吸收,将 THz 波传播的光路用有机玻璃罩密封起来并充入氮气。

3.2 实验结果与讨论

图 3 是聚乙烯样品信号和参考信号的太赫兹时域波形图,在 12 ps 处可以看到聚乙烯样品内的第一个回波信号,可以分别利用直接透过聚乙烯的主脉冲信号和聚乙烯内的第一个回波信号提取聚乙烯的折射率,利用(6)式计算这两次提取的折射率在频域上的折射率误差 $M(L)$ 。

预先测量的样品厚度是 1.0 mm,在 0.9~1.1 mm 范围内,每隔 0.001 mm 计算一次 $M(L)$,图 4 所示是不同厚度对应的折射率误差 $M(L)$ 。从图中可以看到当 $d=1.019$ mm 时, $M(L)$ 有最小值,所以太赫兹波与样品作用的准确厚度是 1.019 mm。

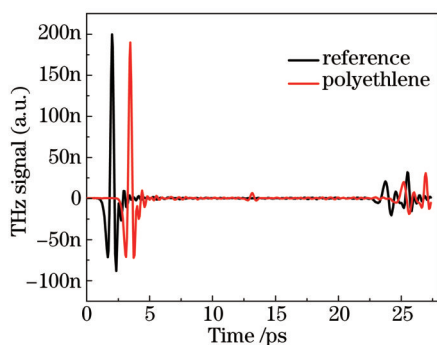


图 3 参考信号和聚乙烯信号的 THz 时域光谱
Fig.3 THz time-domain spectra of reference and polyethylene

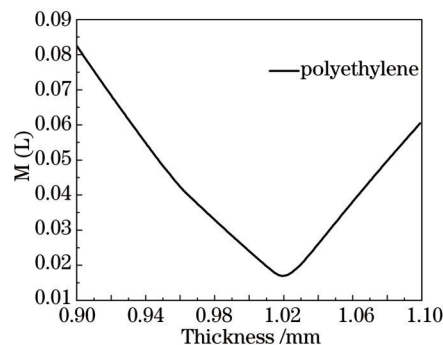


图 4 不同厚度对应的聚乙烯样品的折射率误差 $M(L)$
Fig.4 Refractive index error $M(L)$ of polyethylene samples with different thicknesses

图 5 是 $d=1.019$ mm 时分别利用聚乙烯的 echo 0 和 echo 1 信号提取的折射率。从图中可以看出,0.26~2 THz 频率范围内两者符合的比较好,但是在 2~2.6 THz 和 0.2~0.26 THz 范围内用 echo 1 信号提取的折射率出现了很大的偏差。这种偏差会对样品厚度的确定带来误差,从而使提取的样品光学参数不够准确。上述偏差的产生是因为聚乙烯内的第一个回波 echo 1 信号比较弱,在 2~2.6 THz 和 0.2~0.26 THz 频段的信噪比很差,echo 1 信号的相位出现了漂移,这点从 echo 1 的相位谱也可以看出来。

如图 6 所示, $R(\text{angle})$ 和 $S(\text{angle})$ 分别是参考信号和样品信号的 echo 1 信号对应的相位谱, $S-R(\text{angle})$ 是两者的差值, $2\pi fdt$ 是理论计算的样品的 echo 1 和参考信号的相位差,可见只有在 0.26~2.0 THz 频段两者符合的很好。所以,在计算折射率误差 $M(L)$ 时只需要考虑 0.26~2 THz 这一“有效”频段,如果依然按照系统的有效频段 0.2~2.6 THz 计算,反而会使计算结果不准确。

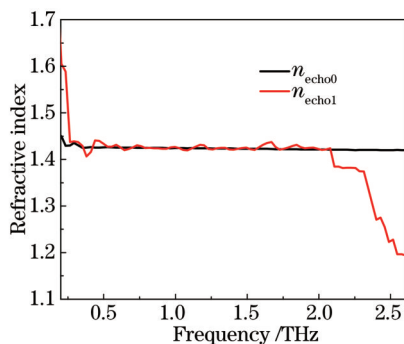


图 5 $d=1.019$ mm 时聚乙烯样品的折射率 $n_{\text{echo}0}$ 和 $n_{\text{echo}1}$
Fig.5 $n_{\text{echo}0}$ and $n_{\text{echo}1}$ of polyethylene sample when $d=1.019$ mm

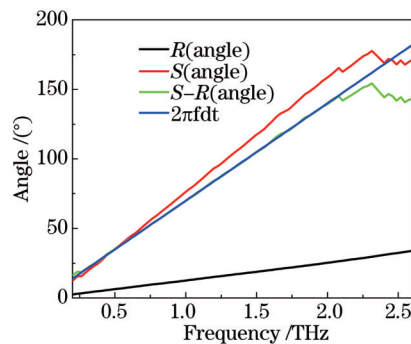


图 6 参考信号和聚乙烯信号的相位及其相位差
Fig.6 Phases and phase difference of reference and polyethylene

同样的方法应用于硅片,图7是测量得到的参考信号和透过硅片的时域信号,采用多点测量求平均的方法得到硅片的平均厚度是0.421 mm。

图8是不同厚度对应的硅片的折射率误差 $M(L)$,从图中可以看到,当 $d=0.416$ mm时, $M(L)$ 达到最小值,这表明太赫兹波通过硅片处的准确厚度应为0.416 mm。

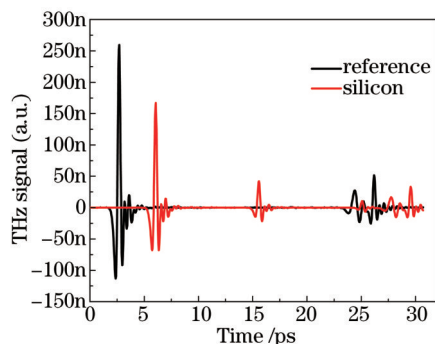


图7 参考信号和硅片信号的THz时域光谱
Fig.7 THz time-domain spectra of reference and silicon wafer

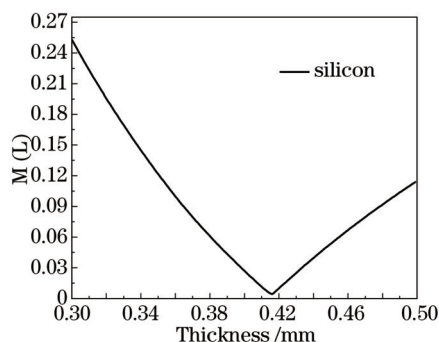


图8 不同厚度对应的硅片的折射率误差 $M(L)$
Fig.8 Refractive index errors $M(L)$ of silicon wafer with different thicknesses

图9是 $d=0.416$ mm时分别利用硅片的 echo 0和 echo 1信号提取的折射率,可以看出平均折射率是3.420,在低频段0.2~0.5 THz提取的折射率偏差较大,特别是回波 echo 1的偏离尤为明显,这是因为硅片在0.2~0.5 THz频率范围对太赫兹波的吸收较强。

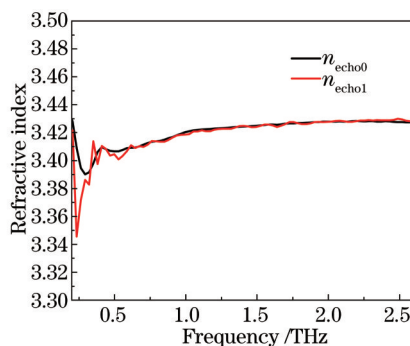


图9 $d=0.416$ mm时硅片的折射率 $n_{\text{echo}0}$ 和 $n_{\text{echo}1}$

Fig.9 $n_{\text{echo}0}$ and $n_{\text{echo}1}$ of silicon wafer when $d=1.019$ mm

Exter等^[2]研究了掺杂硅片在0.1~2 THz的光电性质,从吸收谱中可以看到,在0.1~0.5 THz掺杂硅片对太赫兹波吸收较强,硅片的 echo 1信号本身比较弱,在0.2~0.5 THz频段 echo 1的信号会因为硅片的吸收使得信噪比很差,这样提取的折射率偏离就会更加明显。因此,对于所研究的硅片,在0.5~2.6 THz有效频率范围内,其折射率变化不大,平均折射率为3.420,同时确定的硅片厚度为0.416 mm,这比人们用测厚仪确定的硅片厚度要更精确。

4 结 论

在Duvillaret等提出的同时确定样品厚度和折射率算法的基础上,针对部分样品的第一个回波信号的有效频段与主脉冲信号的有效频段不一致的情况,进一步提出通过第一个回波信号的相位谱来确定计算折射率误差的准确频段,使得计算结果更加准确,并通过提取聚乙烯和硅片样品的折射率和厚度进行验证,说明所改进的方法的可行性。与此同时,在算法上可以通过两次不同厚度计算的折射率误差比较来确定准确厚度的收敛方向得到准确厚度,而不用输入比较准确的厚度,这为确定样品厚度的计算带来了方便。

参 考 文 献

- 1 Grischkowsky D, Keiding S, Exter M V, et al.. Far-infrared time-domain spectroscopy with terahertz beams of dielectrics and

- semiconductors[J]. J Opt Soc Amer B, 1990, 7(10): 2006–2015.
- 2 Exter M V, Grischkowsky D. Optical and electronic properties of doped silicon from 0.1 to 2 THz[J]. Appl Phys Lett, 1990, 56(17): 1694–1696.
- 3 Pedersen J E, Keiding S R. THz time-domain spectroscopy of nonpolar liquids[J]. IEEE J Quantum Electron, 1992, 28(10): 2518–2522.
- 4 Whitaker J F, Gao F, Liu Y. Terahertz-bandwidth pulses for coherent time-domain spectroscopy[C]. SPIE, 1994, 2145: 168–177.
- 5 Duvillaret L, Garet F, Coutaz J L. A reliable method for extraction of material parameters in THz time-domain spectroscopy[J]. IEEE J Select Topics Quantum Electron, 1996, 2(3): 739–746.
- 6 Duvillaret L, Garet F, Coutaz J. Highly precise determination of optical constants and sample thickness in terahertz time-domain spectroscopy[J]. Appl Opt, 1999, 38(2): 409–415.
- 7 Dorney T, Baraniuk R, Mittleman D. Material parameter estimation with terahertz time-domain spectroscopy[J]. J Opt Soc Am A, 2001, 18(7): 1562–1571.
- 8 Pupeza I, Wilk R, Koch M. Highly accurate optical material parameter determination with THz time-domain spectroscopy[J]. Opt Express, 2007, 15(7): 4335–4350.
- 9 Withayachumnankul W, Fischer B M, Abbott D. Material thickness optimization for transmission-mode terahertz time-domain spectroscopy[J]. Opt Express, 2008, 16(10): 7382–7396.
- 10 Scheller M, Koch M. Fast and accurate thickness determination of unknown materials using terahertz time domain spectroscopy[J]. J of Infrared Millimeter & terahertz Waves, 2009, 30(7): 762–769.

栏目编辑：张浩佳