

文章编号: 2095-4980(2018)01-0043-09

基于太赫兹反射谱提取光学参数不确定度分析

解怡君^{1,2}, 孙 萍^{*1,2}

(1.北京市应用光学重点实验室, 北京 100875; 2.北京师范大学 物理系, 北京 100875)

摘 要: 利用太赫兹光谱技术计算物质的光学参数已成为各领域的研究重点。由于太赫兹系统以及算法提取过程依然存在缺陷, 无法实现对物质光学参数的精确测量。为提高光学参数的测量准确度, 对反射式太赫兹时域光谱系统进行全面的不确定度分析。首先分析了基于太赫兹反射时域光谱提取光学参数、折射率和消光系数的 7 种误差来源, 并分别建立了折射率和消光系数的不确定度模型; 然后, 以葡萄糖多晶薄片样品为例, 计算其在 0.2~2.0 THz 频段的折射率和消光系数的各种误差因素占综合不确定度的比例, 总结误差因素对不确定度的贡献。其中, 样品厚度测量的随机误差对折射率的影响最大, 占总误差的 80%; 传递函数误差对消光系数的影响最大, 占总误差的 99%。最后, 对减小折射率和消光系数的不确定度提出了建议, 如采用自参考方法提取光学参数, 采用智能优化算法对样品厚度和光学参数进行优化, 修正 Fabry-Perot 效应等。

关键词: 太赫兹时域反射光谱; 折射率; 消光系数; 测量不确定度; 自参考算法

中图分类号: TN911.7; O433.1

文献标志码: A

doi: 10.11805/TKYDA201801.0043

Uncertainty analysis of optical parameters extraction based on terahertz time-domain reflection spectroscopy

XIE Yijun^{1,2}, SUN Ping^{*1,2}

(1.Beijing Area Major Laboratory of Applied Optics, Beijing 100875, China;

2.Department of Physics, Beijing Normal University, Beijing 100875, China)

Abstract: In recent years, calculating the optical parameters of materials by using terahertz technology has become the key research in various fields. However, due to the disadvantages of the terahertz system and parameter extraction process, the accuracy of the optical parameters is far from ideal. To improve the accuracy, an overall uncertainty analysis for the Terahertz Time-Domain Reflection Spectroscopy (THz-TDS) is performed. Firstly, seven error sources of optical parameters (the refractive index and extinction coefficient) based on terahertz time-domain reflection spectroscopy are analyzed and then the models of uncertainty of refractive index and extinction coefficient are established, respectively. Secondly, the various error factors of refractive index and extinction coefficient of the polycrystalline glucose sample are analyzed. Their proportions in the combined uncertainty are estimated from 0.2 THz to 2.0 THz in order to assess their contributions to the uncertainty. The results show that the largest influence on the refractive index is the random error of sample thickness measurement with a proportion of 80%. The largest influence on the extinction coefficient is the transfer function approximation with a proportion of 99%. Finally, some suggestions for reducing the uncertainty of the refractive index and extinction coefficient are proposed such as using the self-reference method for extracting the optical parameters, using intelligent algorithm for optimizing sample thickness and optical parameters, and correcting the Fabry-Perot effect.

Keywords: Terahertz Time-Domain Reflection Spectroscopy; refractive index; extinction coefficient; measurement uncertainty; self-referenced method

收稿日期: 2016-10-06; 修回日期: 2017-02-25

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(61371055)

*通信作者: 孙 萍 email:pingsun@bnu.edu.cn

基于太赫兹时域光谱(THz-TDS)技术提取物质的光学参数,从而研究物质在太赫兹频段的光学性质,成为当前研究的热点^[1-4]。然而,由于目前 THz-TDS 系统本身存在的技术问题和提取光学参数所采用的算法,都将影响所提取的光学参数的精确度^[5-11],而光学参数的精确性又影响对物质光学性质的准确分析。因此,对于光学参数的不确定度分析具有重要的意义。目前,对基于太赫兹时域透射光谱(Terahertz Time-Domain Transmission Spectroscopy, THz-TDTS)提取的光学参数的不确定度分析较为全面^[12-15]。例如, Sushko O 等^[16]总结出 THz-TDTS 系统的 7 种主要误差来源,并量化分析了各种误差来源对光学参数的影响。近年来,研究者们开展对基于太赫兹时域反射光谱(Terahertz Time-Domain Reflection Spectroscopy, THz-TDRS)提取物质光学参数的不确定度分析^[17-19]。然而,尚缺乏全面透彻的分析,仍需进一步研究。在利用传统算法提取光学参数时,需要分别测量样品信号与参考信号^[19],通常以全反射镜的反射信号作为参考信号^[20]。由于难以克服样品反射面与全反射镜表面之间的位移所导致的固有相移误差^[7],使得传统算法存在局限性。本文采用了自参考算法^[6]提取样品的光学参数。该方法的基本思想是:分别以样品前、后表面的反射信号为参考信号和样品信号,只需 1 次测量,并可以避免固有相移误差。本文分析了基于 THz-TDRS 和采用自参考算法提取光学参数的误差来源的综合不确定度,对减小折射率和消光系数的不确定度提出了一些建议。

1 误差分析

根据 Sushko O 的研究^[16]以及高斯误差传递理论^[21],本文提出基于 THz-TDRS 提取物质折射率和消光系数的测量不确定度模型为:

$$\begin{cases} u_{\bar{n}}(\omega) = k_p \sqrt{\frac{s_{n,E_{\text{sam}}}^2}{N_{E_{\text{sam}}}} + \frac{s_{n,E_{\text{ref}}}^2}{N_{E_{\text{ref}}}} + \frac{s_{n,d}^2}{N_d} + \frac{s_{n,\delta}^2}{2b} + \frac{s_{n,\Delta l}^2}{3} + \frac{f_{n,\theta}}{4} + \frac{f_{n,H}}{5} + \frac{f_{n,\text{FP}}}{6} + \frac{f_{n,n_0}}{7}} \\ u_{\bar{\kappa}}(\omega) = k_p \sqrt{\frac{s_{\kappa,E_{\text{sam}}}^2}{N_{E_{\text{sam}}}} + \frac{s_{\kappa,E_{\text{ref}}}^2}{N_{E_{\text{ref}}}} + \frac{s_{\kappa,d}^2}{N_d} + \frac{s_{\kappa,\delta}^2}{2b} + \frac{s_{\kappa,\Delta l}^2}{3} + \frac{f_{\kappa,\theta}}{4} + \frac{f_{\kappa,H}}{5} + \frac{f_{\kappa,\text{FP}}}{6} + \frac{f_{\kappa,n_0}}{7}} \end{cases} \quad (1)$$

式中: $u_{\bar{n}}(\omega)$ 和 $u_{\bar{\kappa}}(\omega)$ 分别为折射率和消光系数的测量不确定度;下标 n 和 κ 分别表示折射率和消光系数; $s_{E_{\text{sam}}}^2$ 和 $s_{E_{\text{ref}}}^2$ 分别为样品和参考时域信号的随机与系统方差; s_d^2 和 s_{δ}^2 分别为由于样品厚度测量装置分辨率的限制产生的随机与系统方差; $s_{\Delta l}^2$ 为传统算法中的固有相移方差; f_{θ} 为由于样品倾斜导致 THz 波斜入射到样品表面而产生的对准误差; f_H 为只取菲涅尔公式中折射率的实数项而导致的传递函数近似误差; f_{FP} 为样品内多次反射产生的 Fabry-Perot 效应的近似处理而引起的系统误差; f_{n_0} 为空气折射率近似引起的系统误差; $N_{E_{\text{sam}}}$, $N_{E_{\text{ref}}}$ 和 N_d 分别是对样品信号、参考信号和样品厚度的测量次数; k_p 是包含因子, $k_p=1$ 时为标准不确定度, $k_p>1$ 时为扩展不确定度。由于这些误差来源是不相关的,因此在式(1)中不出现协方差。根据测量不确定度的表述^[22], $s_{E_{\text{sam}}}^2$, $s_{E_{\text{ref}}}^2$, s_d^2 , s_{δ}^2 和 $s_{n,\Delta l}^2$ 为 A 类不确定度,可使用统计分析法评定; f_{θ} , f_H , f_{FP} 和 f_{n_0} 为 B 类不确定度,基于估计概率分布或者分布假设来评定。

在传统算法中,基于 THz-TDRS 提取样品的折射率和消光系数时,参考信号 $\tilde{E}_0(\omega)$ 为全反射镜的反射信号,样品信号 $\tilde{E}_1(\omega)$ 为样品前表面的反射信号。 $\tilde{H}(\omega) = \tilde{E}_1(\omega)/\tilde{E}_0(\omega)$ 为样品在频域的传递函数,它是 1 个复数,可以表示为 $\tilde{H}(\omega) = r_{01} \exp(j\Delta\varphi)$, 其中 $r_{01} = |\tilde{H}(\omega)|$ 为菲涅尔反射系数, $\Delta\varphi = \angle\tilde{H}(\omega)$ 为样品信号与参考信号之间的相位差。当 THz 波垂直入射,且空气折射率近似为 1 时,样品的折射率 $n_s(\omega)$ 与消光系数 $\kappa_s(\omega)$ 分别为^[22]:

$$\begin{cases} n_s(\omega) = \frac{1 - |\tilde{H}(\omega)|^2}{1 + |\tilde{H}(\omega)|^2 - 2|\tilde{H}(\omega)|\cos\Delta\varphi(\omega)} \\ \kappa_s(\omega) = \frac{2|\tilde{H}(\omega)|\sin\Delta\varphi(\omega)}{1 + |\tilde{H}(\omega)|^2 - 2|\tilde{H}(\omega)|\cos\Delta\varphi(\omega)} \end{cases} \quad (2)$$

然而在实验中并不能完全保证全反射镜表面与样品前表面共面,由此造成的固有相移^[6]将反映在传递函数中:

$$\tilde{H}(\omega) = r_{01} \exp(i\Delta\varphi) \exp(i\Delta\alpha) \quad (3)$$

式中, $\Delta\alpha = \frac{\pm 2\omega \cdot \Delta l}{c}$ 即为固有相移误差。根据高斯误差传递理论, 由固有相移所引起的折射率方差与消光系数方差分别为:

$$\begin{cases} s_{n,\Delta l}^2(\omega) = \left(\frac{n_0}{L}\right)^2 s_{\Delta l}^2 \\ s_{\kappa,\Delta l}^2(\omega) = \left[\frac{\kappa_s}{2\Delta l}\right]^2 s_{\Delta l}^2 + \left[\frac{c}{2n_0\omega\Delta l} \left(\frac{2n_s}{n_s + n_0}\right)\right]^2 s_{n,\Delta l}^2 \end{cases} \quad (4)$$

式中 L 为样品厚度。

传统算法中传递函数的振幅与相位方差分别为 $s_{|\tilde{H}|}^2(\omega)$ 和 $s_{\angle\tilde{H}}^2(\omega)$, 即经多次测量 $\tilde{E}_0(\omega)$ 与 $\tilde{E}_1(\omega)$ 所得 $|\tilde{H}(\omega)|$ 和 $\angle\tilde{H}$ 之间的方差。根据高斯误差传递理论, 可得到由于 $s_{|\tilde{H}|}^2(\omega)$ 与 $s_{\angle\tilde{H}}^2(\omega)$ 导致的折射率和消光系数的方差分别为:

$$\begin{cases} s_n^2(\omega) = s_{|\tilde{H}|}^2(\omega) \left\{ \frac{2|\tilde{H}(\omega)|}{[1+|\tilde{H}(\omega)|]^2} \right\}^2 + 4 \frac{s_{|\tilde{H}|}^2(\omega) \cos^2 \angle\tilde{H} + s_{\angle\tilde{H}}^2(\omega) |\tilde{H}(\omega)|^2 \sin^2 \angle\tilde{H}}{[1+|\tilde{H}(\omega)|]^8} \\ s_{\kappa}^2(\omega) = [\kappa \arctan(\angle\tilde{H})]^2 s_{\angle\tilde{H}}^2(\omega) + \left[\frac{2\kappa n_s}{|\tilde{H}(\omega)|} \right]^2 s_n^2(\omega) \end{cases} \quad (5)$$

本文采用作者提出的自参考算法^[6], 即以样品前表面的反射信号为参考信号, 样品后表面的反射信号为样品信号。自参考算法相比于传统算法, 可以同时获得样品信号与参考信号, 故有效避免了由于更换样品而产生的固有相移误差, 降低传统算法中样品信号与参考信号之间的噪声叠加, 并且减少测量时间。参考信号 $\tilde{E}_1(\omega)$ 为样品前表面的反射信号, 样品信号 $\tilde{E}_2(\omega)$ 为样品后表面的反射信号。此时 $\tilde{H}'(\omega) = \frac{\tilde{E}_2(\omega)}{\tilde{E}_1(\omega)} = |\tilde{H}'(\omega)| \exp[-\angle\tilde{H}'(\omega)]$ 为样品在频域的传递函数, 即 $\tilde{H}'(\omega) = \frac{4\tilde{n}_s'\tilde{n}_0}{(\tilde{n}_0 + \tilde{n}_s')^2} \exp\left(-\frac{2\kappa_s'\omega d}{c}\right) \exp\left(-i\frac{2n_s'\omega d}{c}\right)$, 则 $|\tilde{H}'(\omega)| = \text{abs}\left[\frac{4\tilde{n}_s'}{(\tilde{n}_0 + \tilde{n}_s')^2}\right] \exp\left(-\frac{2\kappa_s'\omega d}{c}\right)$ 为传递函数的振幅值, $\angle\tilde{H}'(\omega) = \arg\left[\frac{4\tilde{n}_s'\tilde{n}_0}{(\tilde{n}_0 + \tilde{n}_s')^2}\right] - \frac{2n_s'\omega d}{c}$ 为样品信号与参考信号之间的相位差。当 THz 波垂直入射, 且空气折射率近似为 1 时, 则样品的折射率 $n_s'(\omega)$ 与消光系数 $\kappa_s'(\omega)$ 分别为^[6]:

$$\begin{cases} n_s'(\omega) = \frac{c}{2\omega d} \left[-\angle\tilde{H}' + \arg\left(\frac{-4n_s'n_0}{(n_s' + n_0)^2}\right) \right] \\ k_s'(\omega) = \frac{c}{2\omega d} \ln \left[\frac{-4n_s'n_0}{(n_s' + n_0)^2 |\tilde{H}'(\omega)|} \right] \end{cases} \quad (6)$$

自参考算法中传递函数的振幅与相位方差分别为 $s_{|\tilde{H}'|}^2(\omega)$ 和 $s_{\angle\tilde{H}'}^2(\omega)$, 即经多次测量 $\tilde{E}_1(\omega)$ 与 $\tilde{E}_2(\omega)$ 所得 $|\tilde{H}'(\omega)|$ 和 $\angle\tilde{H}'$ 之间的方差。根据公式(6)可知, 由 $s_{|\tilde{H}'|}^2(\omega)$ 与 $s_{\angle\tilde{H}'}^2(\omega)$ 导致的折射率和消光系数的方差可表示为:

$$\begin{cases} s_n'^2(\omega) = \left(\frac{c}{2\omega d}\right)^2 s_{\angle\tilde{H}'}^2(\omega) \\ s_{\kappa}'^2(\omega) = \left[\frac{c}{2\omega d |\tilde{H}'(\omega)|}\right]^2 s_{|\tilde{H}'|}^2(\omega) + \left[\frac{c}{2\omega d} \left(\frac{n_s' - n_0}{n_s' + n_0}\right)\right]^2 \frac{s_n'^2(\omega)}{n_s'^2} \end{cases} \quad (7)$$

比较式(5)和式(7)可知, s_n^2 与 s_{κ}^2 , $s_n'^2$ 与 $s_{\kappa}'^2$ 均与传递函数的幅值或相位的方差呈正相关, 这表明无论采用哪种算法, 提高 THz-TDRS 系统的信号稳定性将能够有效地提高光学参数的准确性。对于一次测量而言, $|\tilde{H}(\omega)|$ 和 $\angle\tilde{H}$ 为定值, 则 s_n^2 与 $s_{|\tilde{H}|}^2(\omega)$ 和 $s_{\angle\tilde{H}}^2(\omega)$ 均成正相关, 即采用传统算法时, 其传递函数的准确度对折射率的准确度影响较大; 自参考算法中, $s_n'^2$ 随着 $s_{\angle\tilde{H}'}^2(\omega)$ 的增大而增大, 与 $s_{|\tilde{H}'|}^2(\omega)$ 无关, 这是由于样品信号 $\tilde{E}_2(\omega)$ 与参考信号 $\tilde{E}_1(\omega)$ 之间的相位差主要体现在被测样品内部且与样品折射率密切相关, 因此传递函数的相位的稳定性对折射率的计算

至关重要。 s_k^2 和 $s_k'^2$ 分别与 s_n^2 和 $s_n'^2$ 有关, 且均呈正相关, 这是由于消光系数本质上取自复折射率的虚部, 因此时域信号误差对折射率的影响同样会反映到消光系数的计算中。因此, 在 THz-TDRS 系统中时域信号的稳定性, 即时域信号误差对折射率、消光系数的影响较大。

采用传统算法获取光学参数时, 由于计算中不涉及样品厚度, 故传统算法的误差来源中不涉及样品厚度测量过程中所引入的系统与随机误差, 即 $s_{n,d}^2 = 0$ 和 $s_{k,d}^2 = 0$ 。自参考算法中, 由式(6)可知, 样品厚度测量误差对光学参数影响较大。在自参考系统中, 由于装置分辨力的限制以及样品表面不平整而产生的误差, $s_d'^2$ 在平均值附近呈现正态分布, 其对光学参数的影响可表示为:

$$\begin{cases} s_{n,d}^{\prime 2} = \left(\frac{2n_s' \omega}{c} \right)^2 s_d'^2 \\ s_{k,d}^{\prime 2} = \frac{1}{s_d'^2} \left(\frac{\kappa_s}{d} \right)^2 + \frac{\kappa_s}{d} \operatorname{abs} \left(\frac{(\tilde{n}_0 + \tilde{n}_s')^2}{4\tilde{n}_s' \tilde{n}_0} \right) \exp \left(-\frac{2\kappa_s' \omega s_d'^2}{cd} \right) \end{cases} \quad (8)$$

对于 B 类不确定度 $f_{\theta} f_H$ 和 f_{FP} , 本文也进行了相应计算。

由 THz 波斜入射到样品表面而产生的对准误差 f_{θ} 广泛存在于 THz-TDS 中。由于样品多为人为放置, 无法完全保证样品表面法线方向与入射 THz 波方向平行, 故必将产生对准误差 f_{θ} 。设入射角偏差在很小的范围内 $[-\delta_{\theta}, \delta_{\theta}]$, $f_{|\tilde{H}|,\theta}$ 为样品倾斜导致的传递函数振幅误差, $f_{\angle \tilde{H},\theta}$ 为样品倾斜导致的传递函数幅角误差。则传统算法中由于样品倾斜而产生的对准误差 f_{θ} 为:

$$\begin{cases} f_{n,\theta} = \frac{2 \left[\cos \delta_{\theta} f_{|\tilde{H}|,\theta} + |\tilde{H}(\omega)| \sin \delta_{\theta} \right] \left[1 + |\tilde{H}(\omega)|^2 \right] - 4 |\tilde{H}(\omega)| f_{\angle \tilde{H},\theta}}{\left[1 + |\tilde{H}(\omega)|^2 - 2 |\tilde{H}(\omega)| \cos \delta_{\theta} \right]^2} \\ f_{k,\theta} = \frac{2 \left\{ \sin \delta_{\theta} \left[1 - |\tilde{H}(\omega)|^2 \right] f_{|\tilde{H}|,\theta} - 2 |\tilde{H}(\omega)| \cos \delta_{\theta} \right\} \left[1 + |\tilde{H}(\omega)|^2 \right] + 4 |\tilde{H}(\omega)|^2 f_{\angle \tilde{H},\theta}}{\left[1 + |\tilde{H}(\omega)|^2 - 2 |\tilde{H}(\omega)| \cos \delta_{\theta} \right]^2} \end{cases} \quad (9)$$

在自参考算法中, 由于太赫兹脉冲在样品中传播的距离为 $2l$, 则对准误差 f_{θ}' 为:

$$\begin{cases} f_{n,\theta}' = 2 \left[\tilde{n}_s(\omega) - n_0 \right] \left(\frac{1}{\cos \delta_{\theta}} - 1 \right) \\ f_{k,\theta}' = 2 \tilde{\kappa}(\omega) \left(\frac{1}{\cos \delta_{\theta}} - 1 \right) + \frac{c}{2\tilde{n}_s'(\omega)\omega d} \frac{\tilde{n}_s' - n_0}{\tilde{n}_s' + n_0} f_{n,\theta}' \end{cases} \quad (10)$$

实际实验中为简化计算过程提高效率, 对于弱吸收介质会采用弱吸收近似, 即假设物质对 THz 波无吸收, 计算样品光学参数。此时传递函数为近似值, 故所得光学参数亦不准确。因此传统算法中传递函数近似误差为:

$$\begin{cases} f_{n,H} = \frac{2 |\tilde{H}(\omega)| \cos \Delta \varphi \left[1 - |\tilde{H}(\omega)|^2 \right]}{1 + 2 |\tilde{H}(\omega)|^2 + |\tilde{H}(\omega)|^4 - 2 |\tilde{H}(\omega)| \cos \Delta \varphi \left[1 + |\tilde{H}(\omega)|^2 \right]} \\ f_{k,H} = \frac{2 |\tilde{H}(\omega)| \sin \Delta \varphi (\omega)}{1 + 2 |\tilde{H}(\omega)|^2 + |\tilde{H}(\omega)|^4 - 2 |\tilde{H}(\omega)| \cos \Delta \varphi \left[1 + |\tilde{H}(\omega)|^2 \right]} \end{cases} \quad (11)$$

自参考系统中的传递函数近似误差为:

$$\begin{cases} f_{n,H}' = \frac{c}{2\omega d} \arg \left[\frac{-4n_s' n_0}{(n_s' + n_0)^2} \right] \\ f_{k,H}' = \frac{c}{2\omega d} \left[\ln \frac{n_s'}{\tilde{n}_s'} \left(\frac{\tilde{n}_s' + n_0}{n_s' + n_0} \right)^2 + \frac{n_s' - n_0}{n_s' (n_s' + n_0)} f_{n,H}' \right] \end{cases} \quad (12)$$

由于太赫兹波在样品内不可避免地会多次反射, 使得 THz 波探测器除了能够探测到样品前表面的反射信号, 还能够探测到来自样品后表面的反射信号, 即产生 Fabry-Perot 效应。通常情况下对传递函数做近似处理, 即忽略其 Fabry-Perot 项, 传统算法中, 只考虑至二次回波, 则 Fabry-Perot 效应的近似处理而引起的系统误差 f_{FP} 为:

$$\begin{cases} f_{n,FP} = \frac{8n_s(n_s-1)}{(1+n_s)^3 \left[1 - |\tilde{H}(\omega)|^2\right] + 4n_s(n_s-1) \left[1 - |\tilde{H}(\omega)|\right]^2} \\ f_{\kappa,FP} = 2 \sin \left\{ \frac{1}{2} \arg \left[\frac{4n'_s(n'_s-1)}{(1+n'_s)^3} \right] + \frac{\kappa\omega d}{c} \right\} \cos \left\{ \frac{\Delta\varphi}{2} + \arg \left[\frac{2n'_s(n'_s-1)}{(1+n'_s)^3} \right] + \frac{\kappa\omega d}{c} \right\} \end{cases} \quad (13)$$

对于自参考算法, 考虑至三次回波, 则 Fabry-Perot 效应的近似处理而引起的系统误差 f'_{FP} 为:

$$\begin{cases} f'_{n,FP} = \frac{c}{2\omega d} \left| \arg \left[\frac{4n'_s(n'_s-1)^3}{(1+n'_s)^5} \right] + \frac{4n'_s\omega d}{c} \right| \\ f'_{\kappa,FP} = \frac{c}{2\omega d} \ln \left[\frac{(1+n'_s)^2}{2(1+n_s'^2)} \exp \left(\frac{2\kappa'_s\omega d}{c} \right) \right] \end{cases} \quad (14)$$

2 实验结果与讨论

作为最重要的单糖之一, 葡萄糖广泛分布于自然界并对人类生命至关重要。近年来, 在 THz 频段对葡萄糖复折射率的研究得到了广泛关注^[23-25]。本文选取葡萄糖多晶粉末(D-(+)-Glucose, Sigma co.Ltd)作为实验对象。首先用玛瑙研钵将药品缓慢研磨, 防止葡萄糖的分子结构被破坏; 然后用孔径为 25 μm 的分子筛过滤, 保证葡萄糖多晶粉末的颗粒直径在 25 μm 以下, 从而减少粉末中的颗粒对 THz 波的散射效应; 最后用压片机(Specac Ltd., England)在 4 吨力条件下定型 6 min, 最终得到厚度为 1.348 mm 的葡萄糖薄片样品。采用 THz-TDRS 系统^[6]测量葡萄糖薄片的时域信号, 在测量过程中保证室温 21 $^{\circ}\text{C}$, 湿度低于 3 % 的真空环境。

为了分析传统算法中固有相移 Δl 对光学参数精确度的影响, 本文模拟了 $\Delta l=0.01$ mm 与 $\Delta l=1$ mm 时产生的折射率和消光系数误差, 计算结果见图 1。可见, 固有相移方差与 Δl 成正相关。在 1.5 THz 以前, 固有相移方差相对较小。而在 1.5 THz 后, 固有相移方差逐渐增大。以 $f=1.76$ THz 为例: 当 $\Delta l=0.01$ mm 和 1 mm 时, 其折射率的固有相移方差 $s_{n,\Delta}^2$ 分别为 6.35×10^{-6} 和 0.06, 后者为前者的 9×10^3 倍; 其消光系数的固有相移方差 $s_{\kappa,\Delta}^2$ 分别为 6.04×10^{-7} 和 0.02, 后者为前者的 4×10^4 倍。因此, 折射率和消光系数的固有相移方差随着固有相移的增大而急剧增大。由于传统算法中固有相移方差不可避免, 并且 Δl 不可精确测量, 故采用传统算法难以获取精确的折射率和消光系数。

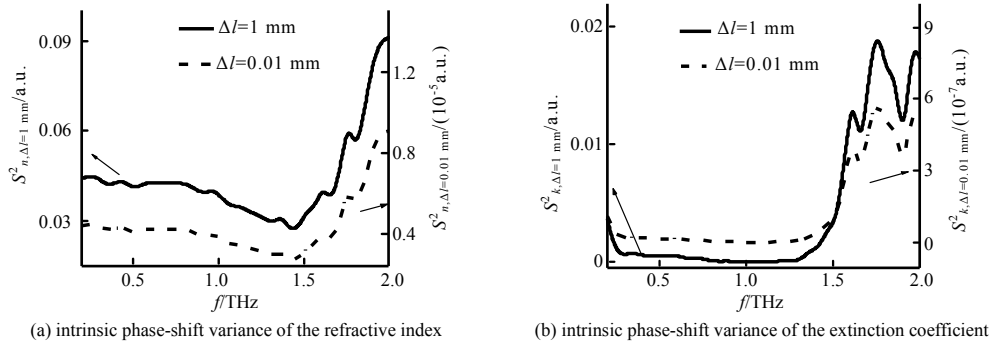


Fig.1 Intrinsic phase-shift variance of the refractive index (a) and the extinction coefficient (b)

图 1 固有相移引起的折射率(a)和消光系数(b)的系统误差

为了消除固有相移对光学参数的影响, 本文采用自参考算法^[6]提取葡萄糖样品的光学参数。为避免随机噪声对时域信号的影响, 时域信号与样品信号均测量 6 次。因为在实验中, THz 光谱系统稳定, 随机噪声小, 6 次测试取平均便可以极大地消除系统的随机噪声。图 2(a)为传统算法时域信号方差, 图 2(b)为自参考算法时域信号方差, 图 2(c)为样品信号平均值。可见, 在 2 个时域信号的波谷与波峰之间的零点位置, 其时域信号误差最大; 自参考算法的参考信号与样品信号方差均小于传统算法的时域信号方差, 分别为传统算法时域信号方差的 43% 和 41%。在自参考算法中, 由于一次测量可以同时得到样品和参考时域谱, 有效地避免了固有相移对光学参数的影响。因此, 参考与样品的时域信号振幅方差减小。

图 3 为折射率与消光系数的综合不确定度曲线, 可见传统算法和自参考算法的折射率和消光系数的综合不确定度均随着频率的增大而有所增大。在自参考算法中, 折射率的综合不确定度 $u'_n(\omega)$ 在 0.2~1.65 THz 范围内较小,

仅为传统算法折射率的综合不确定度 $u_n(\omega)$ 的 5%；虽然在 1.65 THz 以后逐渐增大，但仍仅为 $u_n(\omega)$ 的 0.6%。在自参考算法中，消光系数的综合不确定度 $u_k'(\omega)$ 自 1.5 THz 起逐渐增大，但也仅为传统算法中消光系数不确定度 $u_k(\omega)$ 的 1.3%。由图 3 可知，利用自参考算法所获得的折射率在 0.2~1.66 THz 范围内精确度高，消光系数在 0.2~1.42 THz 范围内精确度高。相比传统算法，采用自参考算法获取折射率和消光系数的可用频段更广。 N 和 k 随着频率而变化，故可通过分析物质光学参数在 THz 范围内的不确定度，以明确各物质在 THz 范围内的可信频段范围。例如，无水葡萄糖的特征峰位于 1.440 THz, 1.591 THz, 1.818 THz 和 1.928 THz，在 0.5 THz 以后若采用传统算法，所获取的消光系数的综合不确定度较大，在获取无水葡萄糖的特征吸收谱时将会引入较大误差。

图 4 为自参考算法中各误差因素所产生的误差。由图 4 可知，在影响折射率的误差因素中，影响由大到小依次为：样品厚度测量的随机误差、样品对准误差、样品厚度测量的系统误差、传递函数近似误差、时域信号误差。影响消光系数的误差因素中，影响从大到小依次为传递函数近似误差、样品对准误差、样品厚度测量的随机误差、时域信号误差、样品厚度测量的系统误差。且这 5 种误差来源均与消光系数有关，在吸收峰位附近方差较大。通过对葡萄糖多晶光学参数的不确定度分析，证实了公式(7)以及相应理论分析的正确性。

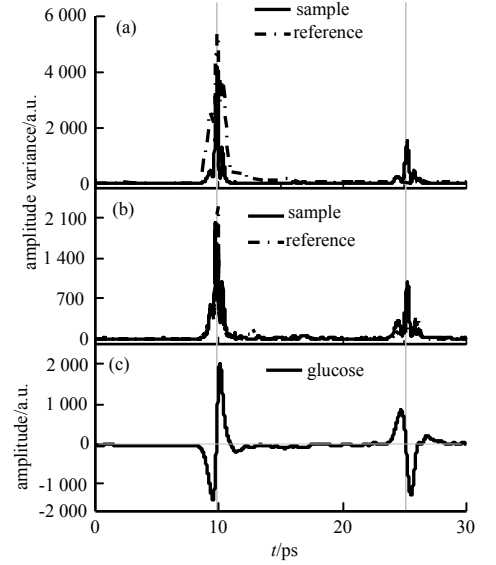


Fig.2 Variances and the time-domain signals (a) variance of the time-domain signal with the traditional algorithm; (b) variance of the time-domain signal with the self-referenced method; (c) time-domain signal of glucose
图 2 THz-TDRS 系统样品与参考时域信号以及误差

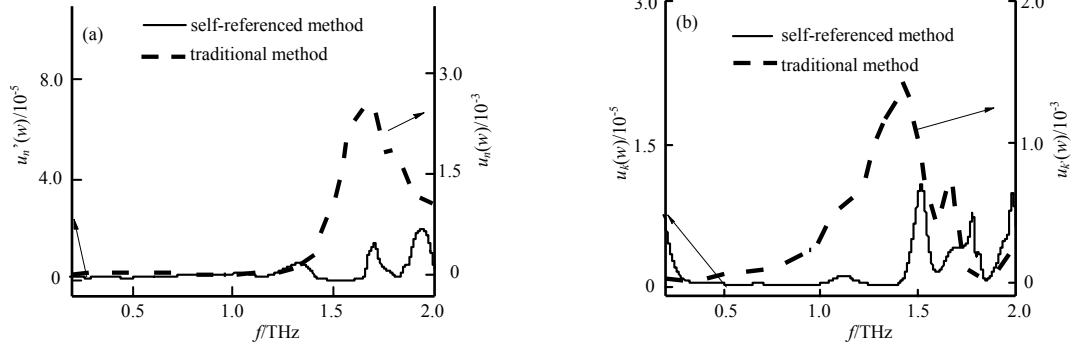


Fig.3 Combined uncertainty of the refractive index (a) and the extinction coefficient (b) of the polycrystalline glucose sample
图 3 葡萄糖多晶样品的折射率(a)与消光系数(b)的综合不确定度

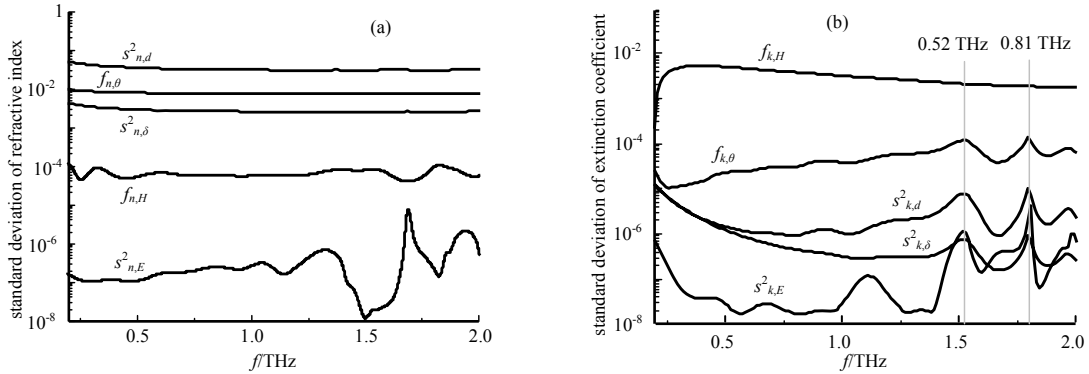


Fig.4 Each error of the refractive index (a) and the extinction coefficient (b)
图 4 折射率(a)和消光系数(b)每个误差因素所产生的误差

图 5 为各误差因素占总误差的比例，定量地描述了各个误差因素对不确定度的贡献。表 1 是各个误差因素占总不确定度的比例。可见通过自参考算法，可将时域信号误差占比降低至 0.01 %。

根据 Withayachumnankul W 等^[9]提出的透射式光学参数不确定度的误差模型, 本文还研究了透射式各误差因素对折射率和消光系数的影响, 并将其与反射式不同算法的结果进行对比分析。表 2 是折射率和消光系数在 0.2~2.0 THz 频率范围内的各误差因素所产生的平均误差。由表 2 可知, 一方面, 透射式不确定度模型中时域信号误差对光学参数的影响相对于反射式误差模型大, 即采用同一 THz 脉冲所提取的折射率与消光系数, 采用透射式模型进行测量时系统与随机噪声对折射率和消光系数的计算影响较大, 分别为本文所提的反射不确定度模型以及传统不确定度模型的 10^3 倍和 10^2 倍; 而另一方面, 采用传统反射不确定度模型虽然可以避免厚度测量的系统与随机误差, 但其固有相移误差对光学参数的影响较大。若采用本文所提不确定度模型, 厚度的测量误差对折射率的影响较大, 但可以通过多次测量厚度以减小此误差。对于 B 类不确定度 f_θ 和 f_H , 传统反射模型所获取的 $f_{n,\theta}$, $f_{\kappa,\theta}$ 和 $f_{\kappa,H}$ 均小于 THz-TDRS 系统中的相应值。本文所提出的反射不确定度模型所获得的 f_θ 和 f_H 均小于反射式传统不确定度模型的相应值, 其中本文所提不确定度模型得到的 $f_{\kappa,\theta}$, $f_{n,H}$ 仅为反射式传统不确定度模型的 0.5%。

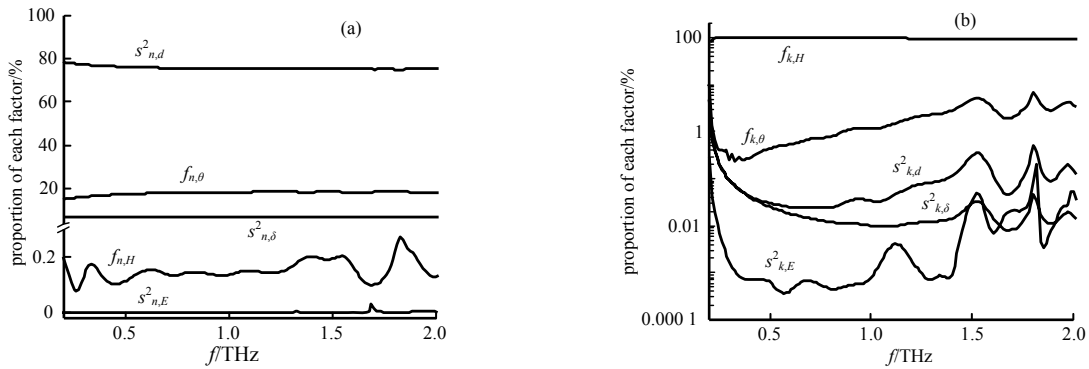


Fig.5 Proportion of each error in total error: (a) the refractive index; (b) the extinction coefficient

图 5 每个误差因子的误差占总误差的比例: (a) 折射率; (b) 消光系数。

表 1 0.2~2.0 THz 范围内每个误差因子的平均误差占总误差的比例(%)

Table1 Proportion of each average error in total error in the 0.2~2.0 THz range

parameters	proportion/%				
	S^2_E	S^2_d	S^2_δ	f_θ	f_H
refractive index	0.000 1	75	6.3	17	0.15
extinction coefficient	0.01	0.13	0.06	2.0	97

表 2 透射式与反射式的不同算法中各误差因素对折射率和消光系数的影响

Table2 Influence of various error factors on the refractive index and the extinction coefficient in different algorithms of transmission and reflection

mode	algorithm	$S^2_{n,E}$	$S^2_{\kappa,E}$	$S^2_{n,d}$	$S^2_{\kappa,d}$	$S^2_{n,\delta}$	$S^2_{\kappa,\delta}$	$f_{n,\theta}$	$f_{\kappa,\theta}$	$f_{n,H}$	$f_{\kappa,H}$
reflection	self-reference	4.50×10^{-7}	2.11×10^{-7}	0.027	2.32×10^{-6}	2.71×10^{-3}	9.85×10^{-7}	7.58×10^{-3}	4.77×10^{-5}	6.48×10^{-5}	3.12×10^{-3}
	tradition	8.62×10^{-6}	2.32×10^{-6}	0	0	0	0	8.62×10^{-3}	4.82×10^{-4}	2.74×10^{-3}	9.51×10^{-3}
transmission	tradition	5.55×10^{-4}	2.42×10^{-4}	1.34×10^{-3}	1.54×10^{-4}	3.78×10^{-4}	4.45×10^{-6}	1.04×10^{-4}	1.06×10^{-5}	9.63×10^{-4}	3.48×10^{-4}

3 结论

本文提出的不确定度模型中, 影响折射率的误差由大到小依次为: 样品厚度测量的随机误差、样品对准误差、样品厚度测量的系统误差、传递函数近似误差、时域信号误差; 影响消光系数的误差由大到小依次为: 传递函数近似误差、样品对准误差、样品厚度测量的随机误差、时域信号误差、样品厚度测量的系统误差。基于上述结论, 本文给出减小 THz-TDRS 提取光学参数不确定度的一些建议: 采用自参考方法, 可避免固有相移误差; 通过多次测量取平均, 可减小时域信号的随机误差; 通过遗传算法^[25-26], 同时对样品厚度和相应的光学参数进行优化, 获得最优厚度和精确的光学参数, 使厚度的系统和随机误差降到最低; 通过遗传算法优化得到的样品光学参数, 减小由于弱吸收近似带来的传递函数的系统误差; 在传递函数中, 考虑实际的空气折射率, 可减小空气折射率近似误差; 对于样品前后表面的时域反射信号可明显区分的厚样品, 可直接截断其二次回波以避免 Fabry-Perot 效应带来的系统误差。对于样品前后表面的时域反射信号不可区分的薄样品, 则在传递函数中考虑 Fabry-Perot 效应的高阶修正以减小由于 Fabry-Perot 效应带来的传递函数系统误差。需要说明的是, 本文提出的基于太赫兹反射时域光谱提取折射率和消光系数不确定度模型仅适用于弱吸收薄样品, 对于包括金属、重掺杂半导体以及对太赫兹吸收较大的材料, 由于得不到后表面的反射信号, 故本模型不适用。

参考文献:

- [1] PING S,YUN Z. Complex dielectric properties of anhydrous polycrystalline glucose in the terahertz region[J]. Optics & Quantum Electronics, 2016,48(27):1-10.
- [2] 冯华,李飞,陈图南. 太赫兹波生物医学研究的现状与未来[J]. 太赫兹科学与电子信息学报, 2013,11(6):827-835. (FENG Hua,LI Fei,CHEN Tunan. Current situation and future trends for THz-biomedicine[J]. Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology, 2013,11(6):827-835.)
- [3] 卢承振,刘维,孙萍,等. 不同水的太赫兹时域光谱[J]. 激光与光电子进展, 2015,52(4):248-255. (LU Chengzhen,LIU Wei,SUN Ping,et al. Terahertz time domain spectroscopy of different kinds of water[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2015, 52(4):248-255.)
- [4] 房艳燕,王玉文,董志伟,等. 太赫兹波大气分层传输特性[J]. 太赫兹科学与电子信息学报, 2016,14(1):1-6. (FANG Yanyan,WANG Yuwen,DONG Zhiwei,et al. Atmospheric attenuation characteristics of THz layered propagation[J]. Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology, 2016,14(1):1-6.)
- [5] DUVILLARET L,GARET F,COUTAZ J. Influence of noise on the characterization of materials by terahertz time-domain spectroscopy[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2000,17(3):452-461.
- [6] ZHANG L,ZHANG Y,HE Y,et al. Extracting complex refractive index from polycrystalline glucose with self-referenced method for terahertz time-domain reflection spectroscopy[J]. Applied Spectroscopy, 2016,70(7):1102-1108.
- [7] VARTIAINEN E,INO Y,SHIMANO R,et al. Numerical phase correction method for terahertz time-domain reflection spectroscopy[J]. Journal of Applied Physics, 2004,96(8):4170-4175.
- [8] 杨晓杰,李向军,刘建军. 石英玻璃太赫兹光学参数测量的误差分析[J]. 红外与激光工程, 2015,4(66):1827-1831. (YANG Xiaojie,LI Xiangjun,LIU Jianjun. Error analysis of quartz glass terahertz optical parameter measurement[J]. Infrared and Laser Engineering, 2015,4(66):1827-1831.)
- [9] WITHAYACHUMNANKUL W,FISCHER B,LIN H,et al. Uncertainty in terahertz time-domain spectroscopy[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2008,25(6):1059-1072.
- [10] DORNEY T,BARANIUK R,MITTLEMAN D. Material parameter estimation with terahertz time-domain spectroscopy[J]. Journal of the Optical Society of America A, 2001,18(7):1562-1571.
- [11] KRUGER M,FUNKNER S,BRUNDERMANN E. Uncertainty and ambiguity in terahertz parameter extraction and data analysis[J]. Journal of Infrared Millimeter and Terahertz Waves, 2011,32(5):699-715.
- [12] 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):409-415.
- [13] MÖLDERS N,JANKOV M,KRAMM G. Application of Gaussian error propagation principles for theoretical assessment of model uncertainty in simulated soil processes caused by thermal and hydraulic parameters[J]. Journal of Hydrometeorology, 2005,6(6):1045-1062.
- [14] PARROTT E P J,ZEITLER J A,GLADDEN L F,et al. Extracting accurate optical parameters from glasses using terahertz time-domain spectroscopy[J]. Journal of Non-Crystalline Solids, 2009,355(37):1824-1827.
- [15] AHMED O S,SWILLAM M A,BAKR M H,et al. Efficient optimization approach for accurate parameter extraction with terahertz time-domain spectroscopy[J]. Journal of Lightwave Technology, 2010,28(11):1685-1691.
- [16] SUSHKO O,SHALA K,DUBROVKA R,et al. Revised metrology for enhanced accuracy in complex optical constant determination by THz-time-domain spectrometry[J]. Journal of the Optical Society of America A, 2013,30(5):979-986.
- [17] REID C B,PICKWELLMACPHERSON E,LAUFER J G,et al. Accuracy and resolution of THz reflection spectroscopy for medical imaging[J]. Physics in Medicine and Biology, 2010,55(16):4825-4838.
- [18] CHEN Y,HUANG S,MACPHERSON E. Frequency-wavelet domain deconvolution for terahertz reflection imaging and spectroscopy[J]. Optics Express, 2010,18(2):1177-1190.
- [19] FAN S,PARROTT E P J,UNG B S Y,et al. Calibration method to improve the accuracy of THz imaging and spectroscopy in reflection geometry[J]. Photonics Research, 2016,4(3):A29-A34.
- [20] CUNLIN Z,KAIJUN M. Terahertz spectroscopy and imaging[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2010(2):1-14.
- [21] ISO 10:9267101889. Guide to the expression of Uncertainty in Measurement(GUM)[S]. 1st ed. International Organization for Standardization, 1993.
- [22] BRUNNER F,SCHNEIDER A,GÜNTHER P. A terahertz time-domain spectrometer for simultaneous transmission and reflection measurements at normal incidence[J]. Optics Express, 2009,17(23):20684-20693.