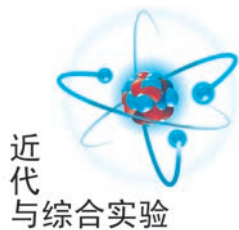


文章编号:1005-4642(2021)02-0009-07



倾斜角对片状样品太赫兹光谱的影响

杨 颀^{a,b}, 秦凡凯^{a,b}, 孟昭晖^{a,b}, 杨义勤^{a,b},
陈 儒^{a,b}, 李 超^{a,b}, 詹洪磊^{a,b}, 苗昕扬^{a,b}, 赵 昆^{a,b}

(中国石油大学(北京) a. 新能源与材料学院; b. 中国石油和化工联合会
油气太赫兹波谱与光电检测重点实验室, 北京 102249)

摘 要:建立了太赫兹波通过楔形样品的传递函数模型并进行理论模拟,利用 3D 打印机制造不同倾斜角度的丙烯腈-丁二烯-苯乙烯共聚物(ABS)楔形样品进行实验分析,探究了楔形样品对太赫兹时域光谱的影响,得到表面倾角对太赫兹波透过率振幅和相位的影响规律,对楔形样品的光学参量计算模型进行修正. 计算结果表明:相位及各光学参量的实验结果与理论值相符.

关键词:太赫兹波;楔形样品;时域光谱;光学参量

中图分类号:O433

文献标识码:A

DOI:10.19655/j.cnki.1005-4642.2021.02.002

太赫兹波通常指频率在 0.1~10 THz 之间的电磁波,其波段介于微波和红外之间,具有瞬态性、相干性、低能性等特点,在诸多领域已有广泛的应用. 在太赫兹光谱测试时,通常将块状、颗粒状、粉末状的样品制为片状,如岩石切片、农业种子压片、生物样品制片等^[1-4]. 在实际制样中会在样品前后表面引入微小的倾斜角度,以致样品的实际形状为楔形,倾斜角对太赫兹波的传播和材料参量的计算产生影响. 由于太赫兹波在楔形样品表面和内部传播过程中的反射、折射及通过样品时光程的变化容易被忽略,因此探究楔形样本对太赫兹波传播过程的影响至关重要.

基于菲涅耳公式,建立了透射式太赫兹时域光谱的传递函数模型,并利用该模型提取出材料的光学参量,该方法广泛应用于对太赫兹吸收较弱的材料,但必须满足一定条件:样品前后表面必须平行且厚度均匀,待测样品表面是磁性各向同性的,太赫兹光束垂直入射样品^[5-6]. 建立在太赫兹频率范围的全变差最小化模型^[7]、材料色散模型^[8]、双层结构模型^[9]等,利用准直空间法^[10]、单纯形法^[11]等光学参量的优化算法,消除了厚度误差、Fabry-Perot 震荡和信号噪声的影响,并同时

计算未知均匀样品的厚度和复折射率,提取出更准确的材料参量. 现有的计算模型均需要保证样品前后表面平行、厚度均匀,而实际待测片状样品的厚度非均匀性很难完全消除,太赫兹波通过表面存在倾角的楔形样品时,太赫兹光束的方向和能量、太赫兹光谱波形及提取得到的光学参量的变化规律还有待研究.

本文建立了太赫兹波通过楔形样品的传递函数模型并做理论模拟,利用 3D 打印机制造不同倾斜角度的丙烯腈-丁二烯-苯乙烯共聚物(ABS)楔形样品用于实验分析,探究楔形样品对太赫兹时域光谱的影响,得到表面倾角对太赫兹波透过率振幅和相位的影响规律,修正楔形样品的光学参量计算模型. 在物理教学中,通过光学知识推导传递函数、光学参量的理论模型,利用 3D 打印技术制备所需参量的样品,结合实验验证,使复杂的太赫兹波在介质中传播过程易于理解.

1 原理分析

太赫兹时域光谱技术通过测量太赫兹电磁场随时间的变化,得到太赫兹信号强度及相位的变化,通过进一步计算得到丰富的光谱信息和光学

收稿日期:2020-09-21;修改日期:2020-11-18

作者简介:杨 颀(1997-),女,山东东营人,中国石油大学(北京)新能源与材料学院 2019 级硕士研究生,研究方向为油气储层太赫兹光谱检测技术.

通讯作者:苗昕扬(1992-),男,辽宁盘锦人,中国石油大学(北京)新能源与材料学院讲师,博士,研究方向为矿物材料的功能特性. E-mail:miaoxiy@cup.edu.cn

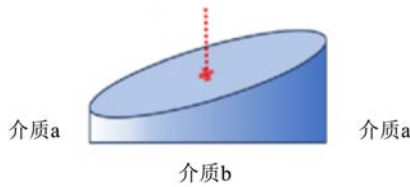


参量,包括折射率、吸收系数、消光系数、介电常量、电导率等. 首先分别测量太赫兹波通过样品的样品信号和通过自由空间的参考信号,得到太赫兹波对于样品的透射传递函数 $\tilde{H}(\omega)$ ^[12-13] 为

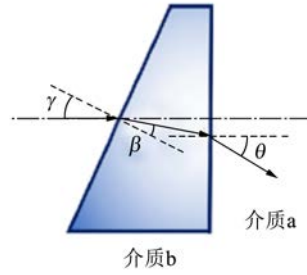
$$\tilde{H}(\omega) = \frac{E_{\text{sam}}(\omega)}{E_{\text{ref}}(\omega)} = \frac{4\tilde{n}_0(\omega)\tilde{n}_{\text{sam}}(\omega)}{[\tilde{n}_0(\omega) + \tilde{n}_{\text{sam}}(\omega)]^2} \cdot \exp\left\{-j\frac{\omega d[\tilde{n}_{\text{sam}}(\omega) - \tilde{n}_0(\omega)]}{c}\right\} \cdot FP(\omega), \quad (1)$$

其中, d 为样品厚度, $\tilde{n}_0(\omega)$ 和 $\tilde{n}_{\text{sam}}(\omega)$ 分别为自由空间中空气介质和样品介质的复折射率, ω 为角频率, $FP(\omega)$ 为太赫兹波在样品内多次反射产生的 Fabry-Perot 标准具效应引起的结果, 在样品较厚、反射波光程差较大情况下, 回波信号较弱, 可忽略多次反射, 则 $FP(\omega) = 1$ ^[12-14]. (1) 式适用于样品内部介质均匀、前后表面平行, 且太赫兹光束垂直入射样品的情况.

楔形样品和太赫兹光束通过楔形样品光路如图 1 所示. 由于样品表面倾斜, 太赫兹辐射的入射角非零, 从样品出射的太赫兹辐射将有复杂的光束几何关系, 光束方向相对于光轴发生偏折, 透过样品的太赫兹波的能量也将发生变化^[15-17].



(a) 楔形样品示意图



(b) 太赫兹光束通过楔形样品的光路图

图 1 楔形样品和太赫兹光束通过楔形样品的光路图

当太赫兹波由楔形样品的中心入射时, 传递函数 $\tilde{H}(\omega)$ 可表示为

$$\tilde{H}(\omega) = \frac{4\tilde{n}_0(\omega)\tilde{n}_{\text{sam}}(\omega)\cos\gamma\cos(\gamma-\beta)}{[\tilde{n}_0(\omega)\cos\beta + \tilde{n}_{\text{sam}}(\omega)\cos\gamma]} \cdot \exp\left\{-j\frac{\omega[l\tilde{n}_{\text{sam}}(\omega) - d\tilde{n}_0(\omega)]}{c}\right\} \cdot \frac{1}{[\tilde{n}_{\text{sam}}(\omega)\cos\theta + \tilde{n}_0(\omega)\cos(\gamma-\beta)]}, \quad (2)$$

其中, $\gamma, \beta, \gamma-\beta, \theta$ 分别为太赫兹脉冲通过样品的前表面和后表面的入射角和折射角, 由 Snell 定律得到这些角度之间的关系为

$$\sin\gamma = n_{\text{sam}}\sin\beta,$$

$$\sin\theta = n_{\text{sam}}\sin(\gamma-\beta).$$

太赫兹波在样品中的传输距离 l 与样品中心厚度 d 和楔形样品表面倾角有关,

$$l = \frac{d}{\cos(\gamma-\beta)}.$$

将样品复折射率 $\tilde{n}_{\text{sam}}(\omega) = n_{\text{sam}}(\omega) - jk(\omega)$ 代入式(2), 并把 $\tilde{H}(\omega)$ 化为模和幅角的形式 $\tilde{H}(\omega) = \rho(\omega)\exp[-j\varphi(\omega)]$, 则有

$$\rho(\omega) = \left| \frac{4\tilde{n}_{\text{sam}}(\omega)\cos\gamma\cos(\gamma-\beta)}{[\cos\beta + \tilde{n}_{\text{sam}}(\omega)\cos\gamma][\tilde{n}_{\text{sam}}(\omega)\cos\theta + \cos(\gamma-\beta)]} \right| \exp\left\{-\frac{\omega l k(\omega)}{c}\right\}, \quad (3)$$

$$\varphi(\omega) = \frac{\omega}{c}[n_{\text{sam}}(\omega)l - d] + \arg\left\{\frac{4\tilde{n}_{\text{sam}}(\omega)\cos\gamma\cos(\gamma-\beta)}{[\cos\beta + \tilde{n}_{\text{sam}}(\omega)\cos\gamma][\tilde{n}_{\text{sam}}(\omega)\cos\theta + \cos(\gamma-\beta)]}\right\}, \quad (4)$$

$\rho(\omega)$ 和 $\varphi(\omega)$ 分别为复透过率的振幅和相位, 经过推导可以得到楔形样品的参量, 如折射率 $n(\omega)$ 、消光系数 $k(\omega)$ 和吸收系数 $\alpha(\omega)$.

当楔形样品的表面倾斜度增大时, 太赫兹波传播的偏移量和通过样品的光程均增大. 由式(2)~(4)可知, 在楔形样品中, 折射率和消光系数、样品表面倾斜角度、太赫兹波在样品中的传输距离决定太赫兹时域波形的相位和主峰幅值. 实验中利用太赫兹光谱振幅和相位计算样品折射

率、吸收率及消光系数时, 如忽略样品表面倾斜角度引起的入射角和通过样品光程变化对计算结果造成的影响则会出现较大误差, 由于误差对光学参量的影响呈以 e 为底的幂指数增长^[18-21], 则楔形样品表面倾斜角度越大, 计算值的误差越大, 对实验结果造成的影响越大, 因此需要对光学参量的计算方法进行修正.

一般光学参量计算模型计算折射率、消光系数和吸收系数时, 只考虑光学参量与信号的振幅

与相位关系,而楔形样品的测量结果受制于样品的倾角和通过样品的光程,利用式(3)~(4)解得包含倾斜角度相关项的光学参量的计算模型,使计算结果更准确.

2 理论模拟

根据理论分析,利用楔形样品传递函数得到的样品的振幅和相位,由式(2)~(4)表示,该模型考虑到楔形样品表面倾斜角度和样品厚度的变化

对样品前后表面入射角、出射角、透射强度及太赫兹波在样品中的实际距离的影响.对太赫兹波通过楔形样品的传递函数模型进行模拟,根据复折射率 $\tilde{n}=n-jk$,其中,折射率 n 为 $1.0\sim 3.0$,消光系数 $k=0.02$,样品中心厚度 $d=1.900\text{ mm}$,频率取 0.8 THz ,表面倾斜角度 $0^\circ\sim 10^\circ$,对楔形样品透过率的振幅、相位随表面倾角变化进行模拟.图 2 为楔形样品透过率的振幅比(样品信号与参考信号的振幅强度之比)随表面倾角变化.

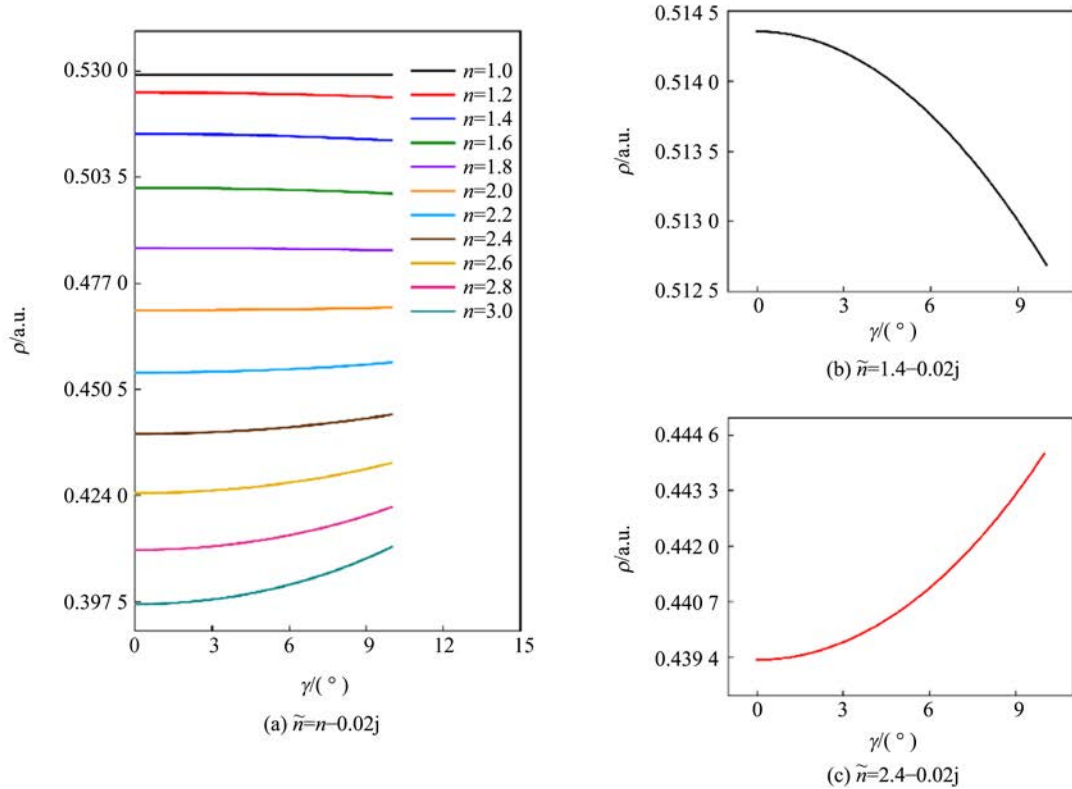


图 2 楔形样品透过率的振幅比随表面倾角变化

振幅 $\rho(\omega)$ 随折射率 n 的增加逐渐降低, $\tilde{n}=1.4-0.02j$ 时,随表面倾斜角度的增加,振幅逐渐降低; $\tilde{n}=2.4-0.02j$ 时,随表面倾斜角度的增加,振幅呈指数增加.在相同频率下,折射率 $n=1\sim 2$ 时,楔形样品透过率的振幅 $\rho(\omega)$ 随倾斜角度增大逐渐降低;折射率 $n=2\sim 3$ 时,楔形样品透过率的振幅 $\rho(\omega)$ 随倾斜角度增大呈指数增加,且随折射率的增加振幅变化的幅度增大,倾角对振幅影响增大.

图 3 为楔形样品相位随表面倾角 ($0^\circ\sim 10^\circ$) 变化.由图 3 可以看出,相位 $\varphi(\omega)$ 随折射率 n 的增加而增加,在样品折射率确定时,相位随楔形样品表面倾斜角度的增加而呈指数增大, $n=1.500$,

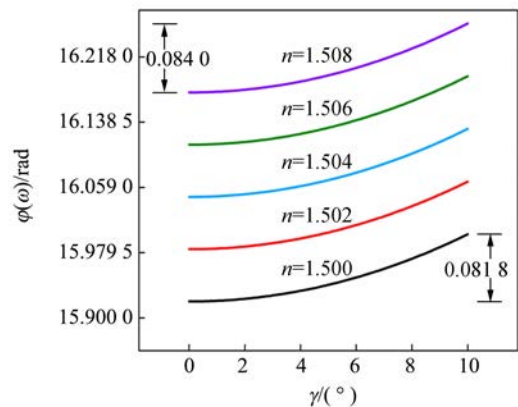


图 3 楔形样品相位随表面倾角变化 ($\tilde{n}=n-0.02j$)

1.504, 1.508 时, 相位随表面倾斜角度变化的幅度分别为 0.081 8 rad, 0.082 9 rad, 0.084 0 rad, 随折射率的增加楔形样品表面倾斜角度对相位的影响增大. 楔形样品表面倾斜角度的变化会影响太赫兹波在样品前后表面的入射角和出射角, 使样品前后表面的折射和反射发生变化, 同时改变了太赫兹波通过样品的光程, 通过模拟数据可以看出楔形样品透过率的振幅和相位变化明显受到表面倾斜角度影响.

在 0.8 THz 频率下, 折射率 $n=1.5$, 消光系数 $k=0.02$, 中心厚度不同的楔形样品对太赫兹波透过率振幅比和相位的影响, 如图 4 所示.

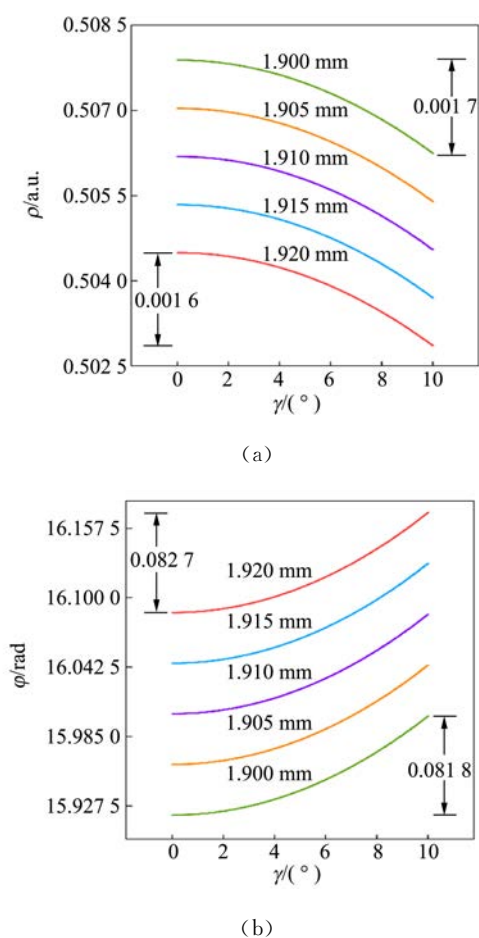


图 4 楔形样品中心厚度(1.900~1.920 mm)对振幅比和相位的影响

由图 4 可见: 倾斜角度为 0° 时, 随着样品中心厚度从 1.900 mm 增加到 1.920 mm, 振幅比由 0.507 9 降低到 0.504 5, 相位由 15.920 6 rad 增加到 16.087 5 rad, 随着样品中心厚度的增加, 透过率振幅逐渐降低, 而相位逐渐增加. 当样品厚度一定时, 随楔形样品倾斜角度的增加振幅逐渐

降低, 且楔形样品厚度越小, 表面倾斜角度对透过率振幅的影响越大; 而相位随楔形样品倾斜角度的增加呈指数增长, 样品厚度越大, 倾斜角度对相位的影响越大.

通过理论模拟结果可以看出: 当楔形样品中心厚度相差较大, 而倾斜角度相差较小时, 透过率振幅大小主要由厚度决定; 当楔形样品中心厚度相差很小或相同时, 样品表面倾斜角度会对透过率振幅造成很大影响. 不同折射率材料的楔形样品表面的倾角均会对太赫兹时域光谱幅值和相位产生影响, 且影响程度不同.

3 实 验

楔形样品的透射式太赫兹光谱检测原理如图 5 所示, 测试过程中温度为 $22\sim 25^{\circ}\text{C}$, 湿度为 $32\%\sim 36\%$, 测试前先测试空气作为参考信号. 保证样品位置固定, 太赫兹波穿过样品中心. 太赫兹源辐射的太赫兹波首先经过第 1 面反射镜, 照射到样品中心位置, 再经第 2 面反射镜后被探测器接收. 每个样品重复测量 10 次, 保证每个样品测量时摆放位置、倾斜角朝向一致, 得到样品太赫兹时域光谱数据, 利用快速傅里叶变换获得与频率相关的振幅和相位信息, 进一步计算得到样品的光学参量, 例如吸收系数、消光系数及折射率.

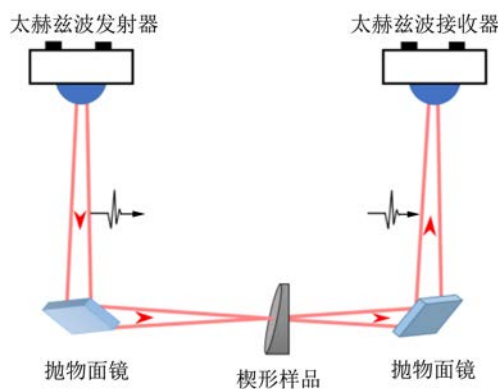
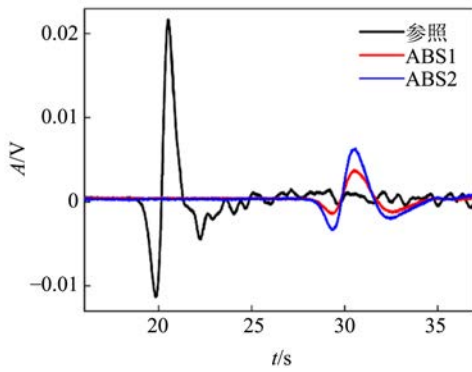
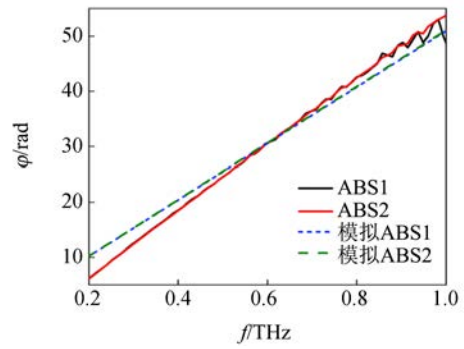


图 5 太赫兹光谱检测原理示意图

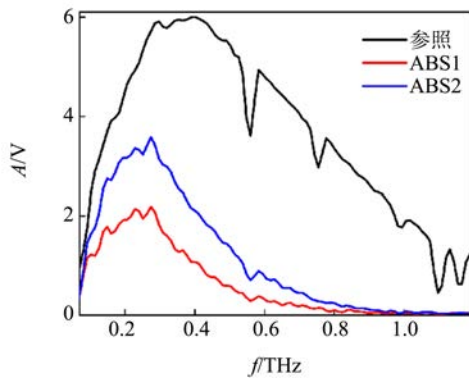
使用 3D 打印机制备 2 个表面倾角确定的均质丙烯腈-丁二烯-苯乙烯共聚物 (ABS) 楔形样品进行实验: 楔形样品 ABS1 的表面倾斜角为 8.8° , 厚度为 5.300 mm; 楔形样品 ABS2 的表面倾斜角为 2.2° , 厚度为 5.200 mm. 利用太赫兹光谱系统对 2 个不同倾角的 ABS 楔形样品进行测试, 结果如图 6 所示.



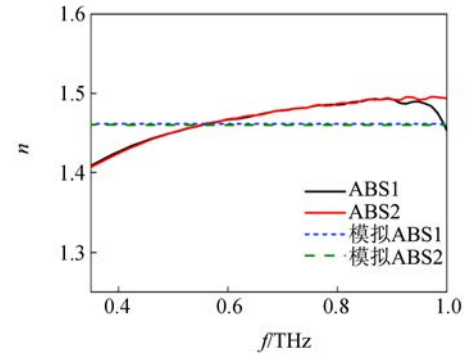
(a) 时域谱



(a) 相位谱



(b) 频域谱



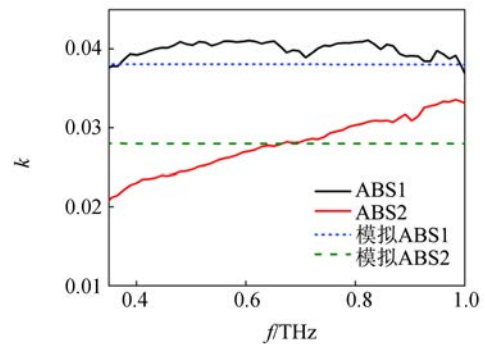
(b) 折射率

图 6 不同倾斜角度楔形样品的太赫兹时域谱和频域谱

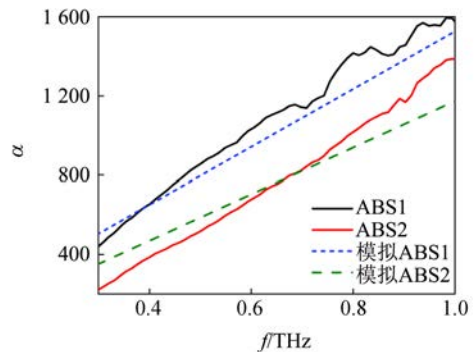
从太赫兹时域光谱图中可知,利用太赫兹光谱系统对 ABS1 和 ABS2 楔形样品进行测试时,波形的峰值有明显的变化,ABS1 的太赫兹时域谱峰值明显低于 ABS2,延迟时间变化不明显. 对时域谱进行快速傅里叶变换得到太赫兹频域谱,在 0.1~1.0 THz 频率下通过 ABS2 的太赫兹信号强度大于 ABS1,楔形样品表面倾斜角度越大,太赫兹信号强度越小,由于楔形样品表面倾斜角不同,使太赫兹波与样品表面入射角和出射角发生变化,在楔形样品表面太赫兹波的反射、折射不同,同时经过样品的光程发生变化,对太赫兹光谱透过率的振幅产生影响.

实验以及模拟 ABS1 和 ABS2 样品在 0.4~1 THz 下的相位谱和计算得到的各光学参量如图 7 所示.

1)从图 7(a)中可以看出随着频率增加相位差线性增大,ABS2 的相位差略高于 ABS1,模拟数据和实验数据趋势相同,在频率为 0.6 THz 处模拟数值与实验数值吻合度最好,在 0.6 THz 处 ABS1 和 ABS2 的相位相差 0.018 4 rad.



(c) 消光系数



(d) 吸收系数

图 7 楔形样品 ABS1 和 ABS2 的相位谱、折射率、消光系数和吸收系数的模拟及实验结果

2)利用一般光学参量计算模型通过相位差计算得到样品的折射率,如图 7(b)所示,实验测得 ABS1 楔形样品折射率略小于 ABS2 样品。

3)消光系数的计算受到振幅和相位的共同影响,在 0.4~1.0 THz 下 ABS1 和 ABS2 的消光系数有明显差别,表面倾斜角较大的 ABS1 样品的消光系数大于 ABS2 样品,在 0.7 THz 处 ABS1 和 ABS2 消光系数的实验计算值分别 0.039 5 和 0.028 6,理论模拟值分别为 0.038 1 和 0.028 0,实验值与理论值基本相符。

4)由图 7(d)可以看出,吸收系数随频率的增加呈线性增加,ABS1 的吸收系数计算值明显高于 ABS2,在 0.7 THz 处 ABS1 和 ABS2 的吸收系数相差 295。

通过对 ABS1 和 ABS2 的振幅、相位和光学参量的实验和模拟计算,可以看出模拟数据与实验数据基本吻合,随频率变化的趋势相符,说明建立的传递函数模型可以反映出太赫兹波通过楔形样品时的变化,同时可以看出楔形样品倾斜角度的变化在实验中会对太赫兹波透过率的振幅和相位产生影响,所以一般的光学参量计算模型并不适用于楔形样品,不同倾斜角度样品计算光学参量时会产生误差,需要在楔形样品光学参量计算模型中加入与样品表面倾斜角度有关项对计算模型进行修正。

4 结 论

对于片状材料的太赫兹时域光谱测试而言,上下表面的微小倾角会对测试结果造成较大影响。通过理论和实验研究可知:不同折射率材料的楔形样品对太赫兹时域光谱影响程度不同,随样品倾斜角度的增加透过率的振幅和相位变化均呈指数增长;对于中心厚度相近的样本,倾斜角度对太赫兹波形有较大影响,计算得到的光学参量存在误差,应在计算时加入倾斜角度相关项进行修正,提高实验结果的准确性。通过建立楔形样品的传递函数模型进行模拟计算,结合 3D 打印样品进行太赫兹时域光谱测试,相位及各光学参量的模拟与实验结果相符,得到楔形样品的太赫兹光谱响应特征。

参考文献:

[1] Zhan H L, Chen M X, Zhao K, et al. The mecha-

nism of the terahertz spectroscopy for oil shale detection [J]. *Energy*, 2018,161:46-51.

- [2] Du S Q, Li H, Xie L, et al. Vibrational frequencies of anti-diabetic drug studied by terahertz time-domain spectroscopy [J]. *Applied Physics Letters*, 2012,100(14):1592.
- [3] 詹洪磊,王玉霞,王雪松,等. 煤炭标准物质的太赫兹光谱聚类分析[J]. *太赫兹科学与电子信息学报*, 2016,14(1):26-30.
- [4] 王芳,郭帅,赵景峰,等. 利用太赫兹时域光谱定性鉴别不同品种的首蓿的研究[J]. *光谱学与光谱分析*, 2018,38(11):3638-3644.
- [5] Duvillare T 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*, 2002,2(3):739-746.
- [6] Withayachumnankul W, Ferguson B, Rainsford T, et al. Simple material parameter estimation via terahertz time-domain spectroscopy [J]. *Electronics Letters*, 2005,41(14):800-801.
- [7] Dorney T D, Baraniuk R G, Mittleman D M. Material parameter estimation with terahertz time-domain spectroscopy [J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 2001,18(7):1562-1571.
- [8] 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):1685-1692.
- [9] Scheller M, Jansen C, Koch M. Analyzing sub-100- μm samples with transmission terahertz time domain spectroscopy [J]. *Optics Communications*, 2009,282(7):1304-1306.
- [10] Jin B B, Zhang C H, Shen X F, et al. Extraction of material parameters of a bi-layer structure using terahertz time-domain spectroscopy [J]. *Science China-Information Sciences*, 2014,57:1-10.
- [11] Zhang D D, Ren J J, Li L J, et al. Terahertz time-domain spectroscopy method for optical parameter extraction of plastic materials [J]. *Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology*, 2017,15(6):916-920.
- [12] Yang F, Liu L P, Song M J, et al. Uncertainty in terahertz time-domain spectroscopy measurement of liquids [J]. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 2017,38(2):229-247.

- [13] Li Z, Zhang C H, Zhao X Y, et al. THz absorption coefficient spectrum algorithm based on accurate estimation of sample thickness [J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2012, 32 (4): 1043-1046.
- [14] 王鹤,赵国忠. 几种塑料的太赫兹光谱检测[J]. 光子学报, 2010, 39(7): 1185-1188.
- [15] Miao X Y, Zhan H L, Zhao K, et al. Oil yield characterization by anisotropy in optical parameters of the oil shale [J]. Energy & Fuels, 2016, 30 (12): 10365-10370.
- [16] 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, 44 (6): 1827-1831.
- [17] 董海龙,汪家春,赵大鹏,等. 延迟线位置偏差对太赫兹时域光谱系统的测量不确定度影响分析[J]. 光谱学与光谱分析, 2018, 38(11): 3379-3384.
- [18] 解怡君,孙萍. 基于太赫兹反射谱提取光学参数不确定度分析[J]. 太赫兹科学与电子信息学报, 2018, 16(1): 43-50.
- [19] 董海龙,汪家春,刘瑞煌,等. 厚度误差对 THz-TDS 的测量不确定度分析[J]. 发光学报, 2019, 40 (3): 382-388.
- [20] 管丽梅,苗昕扬,詹洪磊,等. 基于太赫兹技术的熔融沉积 3D 打印误差分析[J]. 太赫兹科学与电子信息学报, 2018, 16(2): 218-222.
- [21] 韩晓惠,张瑾,杨晔,等. 基于太赫兹时域光谱技术的光学参数提取方法的研究进展[J]. 光谱学与光谱分析, 2016, 36(11): 3449-3454.

Influence of tilt angle on the terahertz spectra of flake samples

YANG Qi^{a,b}, QIN Fan-kai^{a,b}, MENG Zhao-hui^{a,b}, YANG Yi-qin^{a,b}, CHEN Ru^{a,b},
LI Chao^{a,b}, ZHAN Hong-lei^{a,b}, MIAO Xin-yang^{a,b}, ZHAO Kun^{a,b}

(a. College of New Energy and Materials; b. Key Laboratory of Oil and Gas Terahertz Spectroscopy and Photoelectric Detection, Petroleum and Chemical Industry Federation, China University of Petroleum, Beijing 102249, China)

Abstract: A terahertz transfer function model for wedge-shaped sample was established, and the theoretical simulation was carried out. Acrylonitrile butadiene styrene copolymer (ABS) samples with different tilt angles made by 3D printer were used for experiment analysis. The influence of wedge-shaped sample on terahertz time-domain spectra was investigated, the amplitude and phase of terahertz wave transmittance were obtained, and the optical parameters of wedge-shaped sample were modified. The calculated results showed that the experimental results of phase and optical parameters were in agreement with the theoretical values.

Key words: terahertz wave; wedge-shaped sample; time-domain spectra; optical parameters

[责任编辑:任德香]