

基于 Kramers-Kronig 关系建立金属太赫兹色散模型

牟媛 吴振森 张耿 高艳卿 阳志强

Establishment of THz dispersion model of metals based on Kramers-Kronig relation

Mou Yuan Wu Zhen-Sen Zhang Geng Gao Yan-Qing Yang Zhi-Qiang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, **66**, 120202 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.120202

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.120202>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I12>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

一种求解 Birkhoff 动力学函数和 Lagrange 函数的简化方法

[A simplified method of solving Birkhoffian function and Lagrangian](#)

物理学报.2016, 65(18): 180201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.180201>

炉膛三维温度场重建中 Tikhonov 正则化和截断奇异值分解算法比较

[Comparative studies of Tikhonov regularization and truncated singular value decomposition in the three-dimensional flame temperature field reconstruction](#)

物理学报.2015, 64(24): 240201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.240201>

基于块稀疏贝叶斯学习的多任务压缩感知重构算法

[A recovery algorithm for multitask compressive sensing based on block sparse Bayesian learning](#)

物理学报.2015, 64(7): 070201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.070201>

带有分数阶热流条件的分数阶热波方程及其参数估计问题

[Parameters estimation for a one-dimensional time fractional thermal wave equation with fractional heat flux conditions](#)

物理学报.2014, 63(14): 140202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.140202>

构造 Birkhoff 表示的广义 Hojman 方法

[General Hojman's method for the construction of Birkhoffian representation](#)

物理学报.2013, 62(9): 090205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.090205>

基于Kramers-Kronig关系建立金属太赫兹色散模型*

牟媛¹⁾ 吴振森^{1)†} 张耿¹⁾ 高艳卿²⁾ 阳志强³⁾

1)(西安电子科技大学物理与光电工程学院, 信息感知技术协同创新中心, 西安 710071)

2)(中国科学院上海技术物理研究所, 红外物理国家重点实验室, 上海 200083)

3)(西安工业大学光电工程学院, 西安 710021)

(2017年1月12日收到; 2017年3月30日收到修改稿)

提出了一种基于测量反射率谱、使用Kramers-Kronig (KK) 关系建立金属太赫兹色散模型的方法. 结合合金铝和合金铜4—40 THz的测量反射率谱, 通过反射系数振幅和相位的KK关系, 采用高频端指数外推, 低频端常数外推的方法, 反演金属复折射率. 以KK反演的复折射率作为实验值, 以拟合复折射率和实验值误差最小为准则, 使用遗传优化算法, 拟合了合金铝和合金铜的Drude色散参数(等离子频率和碰撞频率). 基于优化的Drude模型计算了0.1—40 THz材料的复折射率, 与椭偏仪的实测结果符合, 验证了模型的准确性. 该方法理论与实验相互验证, 以测量的复折射率作为实验定标, 将远红外频段的色散信息拓展到太赫兹频段, 确定了太赫兹频段金属的微观物理参数, 提供了太赫兹频段色散和散射机理的研究依据.

关键词: 太赫兹, 远红外, Drude模型, Kramers-Kronig关系

PACS: 02.30.Zz, 07.60.-j, 78.20.-e, 78.20.Ci

DOI: 10.7498/aps.66.120202

1 引言

材料的色散特性, 如介电参数、磁导率、表面阻抗等是用来表征固体宏观光学性质的物理量, 也是目标散射特性、通信及天线系统设计的重要基础^[1,2]. 对于不同材料, 如金属、绝缘体和半导体等, 在不同频段内影响其介电性质的物理机制有所不同, 但主要受三个物理过程约束: 电子跃迁、晶格振动和自由载流子效应^[3]. 常见的理论研究材料光学常数的模型为Lorentz电介质吸收模型和Drude金属吸收模型^[4,5]. 在远红外频段, Drude模型适合于贵金属^[6,7]、半导体^[8,9]的介电参数研究, 由于材料的微观色散参数如碰撞频率恰好位于太赫兹至远红外频段, 因此太赫兹/远红外频段材料的色散特性引起了广泛的研究. Spitzer等^[10,11]通过测量材

料的透反射率谱, 结合经典介电模型, 研究了远红外频段石英晶体、铁电氧化材料BaTiO₃, SrTiO₃, TiO₂等物质的色散关系. 美国海军研究实验室在液氮环境中测量了InSb, InAs, GaSb, GaAs以及室温下InP和AlSb材料的反射率, 使用Lorentz振子模型数值拟合了其反射率特性^[12]. Willis等^[13,14]根据时域有限差分法, 系统蒙特卡罗法和分子动力学法等算法, 验证了Drude模型对于硅材料的适用性. Lucyszyn^[15]证明了Drude经典模型可用来描述室温下常见金属的电损耗特性, 为30 GHz—12 THz的计算机辅助设计测量仿真系统提供了材料色散特性的信息. 但是, 单一的Drude模型无法准确描述材料的带间传输特性, 也无法在整个波谱内解释材料的色散特性, 因而在太赫兹频段, 需要采用不同的测量手段建立色散模型. Ordal等^[16]根据非谐振腔实验测量了不同金属的吸收谱, 结合

* 国家自然科学基金(批准号: 61571355)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wuzhs@mail.xidian.edu.cn

吸收系数和折射率实部的Kramers-Kronig (KK) 关系, 反演了金属在亚毫米波频段的光学常数. Silfsten等^[17]基于THz光谱仪测量了多孔材料的透射率谱, 利用KK关系反演了0.5—2.0 THz的复折射率. 目前, 较为成熟的太赫兹时域光谱 (THz-TDS) 技术^[18]和太赫兹椭偏技术^[19]可以获得有限频点不同材料的光学参数. 但是由于太赫兹辐射技术的局限, 太赫兹实验系统需要提供真空或者低温的测量环境, 实验样品需要保证严格的光学蚀刻标准, 对表面粗糙度、样品厚度和材料掺杂度等加工工艺要求严苛, 造成了太赫兹色散常数提取实验成本高、测量频点有限和稳定性差等缺点^[20]. 由于材料的反射光谱包含丰富的物理信息, 可用来定量研究材料的微观物理参数和光学常数, 同时KK关系能更好地反映材料的带间跃迁效应, 因而基于KK关系建立的经典介电模型将有利于太赫兹频段材料特性的研究及样品标准的确定.

文献^[21]提出了基于不同合金的反射率谱, 以远红外椭偏仪的测量复折射率作为实验定标, 使用KK理论提取材料复折射率的方法. 文献^[21]以椭偏仪的测量复折射率为初值, 对太赫兹频段的测量反射率谱进行了去噪平滑, 获得了测量频段4—40 THz不同金属的复折射率. 然而, 由于定标复折射率位于远红外频段, 因而在太赫兹低频端的复折射率反演将产生较大误差. 同时, 若材料反射率谱存在明显的带间跃迁效应, 则无法依据单一频点的定标复折射率平滑宽频段的反射率谱. 本文在文献^[21]的基础上, 以合金铝和合金铜的测量反射率谱与修正谱误差最小为原则^[22], 采用经典介电模型对测量反射率谱进行平滑滤波, 可准确拟合测量反射率谱的频率特性, 适用于金属、介质等多种材料. 但是受太赫兹光谱测量中散射损耗及信噪比的影响, 单纯通过反射率谱拟合的Drude介电模型无法准确描述材料在宽频带内的色散特性. 因此, 结合反射率振幅和相位的KK关系, 依据滤波后的修正反射率谱, 数值反演了与椭偏仪测量值相符合的金属复折射率. 由于KK高频端外推指数因子适应于测量反射率谱, 可减少反射率谱测量误差对反演复折射率的影响, 有利于准确建立材料的色散模型. 文中以KK反演的复折射率作为实验值, 以拟合复折射率和实验值误差最小为目标函数, 建立遗传优化模型, 分别获得了0.1—20 THz及15—40 THz频域内金属的Drude色散模型, 计

算结果与椭偏仪测量的复折射率高度符合. 该方法为太赫兹色散实验提供了理论校对, 为研究材料太赫兹色散特性和散射机理提供了计算标准.

2 反射率谱的测量

在太赫兹至远红外频段, 受趋肤效应的影响, 入射波只能穿透纳米级厚度的金属薄膜, 而对于常见的块状金属, 透射能量几乎为0, 反射率谱是分析其物理性质的有效实验手段之一. 金属的反射率谱包含丰富的材料色散特性, 反射率谱的定量分析可精确提取材料的复折射率和微观物理参数. 当入射波垂直照射金属表面, 反射率 R 与复折射率 $\tilde{n} = n + i\kappa$ 的关系为

$$R(\omega) = \frac{(n(\omega) - 1)^2 + \kappa(\omega)^2}{(n(\omega) + 1)^2 + \kappa(\omega)^2}, \quad (1)$$

其中, n 为实折射率, κ 为消光系数. 复折射率 \tilde{n} 与复介电参数 $\tilde{\epsilon} = \epsilon_r + i\epsilon_i$ 满足如下关系:

$$n(\omega) = \sqrt{(\epsilon_r(\omega) + \sqrt{\epsilon_r(\omega)^2 + \epsilon_i(\omega)^2})/2}, \quad (2)$$

$$\kappa(\omega) = \sqrt{(-\epsilon_r(\omega) + \sqrt{\epsilon_r(\omega)^2 + \epsilon_i(\omega)^2})/2}, \quad (3)$$

其中, ϵ_r 和 ϵ_i 分别为复介电参数 $\tilde{\epsilon}$ 的实部和虚部. 复折射率的频率特性揭示了不同频段散射特性的微观机理, 也决定了材料光谱特性的频率依赖性. 在Drude近似模型中, 复介电常数 $\tilde{\epsilon}(\omega)$ 定义为

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma_0}, \quad (4)$$

式中, $\omega_p = \sqrt{Ne^2/m\epsilon_0}$ 为等离子频率; 其中, N 为单位体积的电子数目, m 为电子质量, e 为电子电荷; γ_0 为碰撞频率; ϵ_∞ 为频率无限大时的介电常数, 与入射频率有关. 由于在远红外至太赫兹频段, ϵ_r 和 ϵ_i 远远大于 ϵ_∞ , 故而令 $\epsilon_\infty = 1$, 从而 ϵ_r 和 ϵ_i 分别表示为

$$\begin{aligned} \epsilon_r(\omega) &= 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma_0^2}, \\ \epsilon_i(\omega) &= \frac{\omega_p^2\gamma_0}{\omega^3 + \omega\gamma_0^2}. \end{aligned} \quad (5)$$

如图1所示, 文献^[21]采用Vertex 80V光谱仪, 测量了合金铝和合金铜4—40 THz的反射率谱. 然而, 受光谱仪辐射和探测技术的影响, 测量的反射率谱受系统噪声影响严重, 尤其在太赫兹频段, 反射率谱存在明显的噪声起伏. 为了减少噪声对色散

参数(如 $\tilde{n}, \tilde{\epsilon}$) 以及微观物理量(如 ω_p 和 γ_0) 的反演误差, 需要对测量的反射率谱进行去噪平滑.

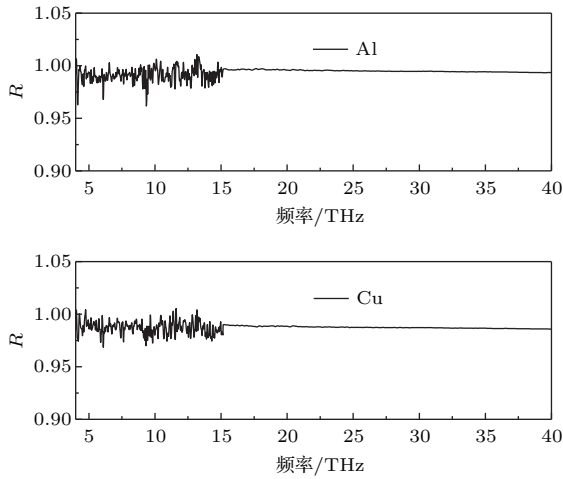


图1 合金铝和合金铜的测量反射率谱
Fig. 1. Measured reflection spectra of Al alloy and Cu alloy.

文献[21]使用远红外测量复折射率作为实验初值, 对测量反射率谱进行平滑去噪, 然而由于不同类型的材料具有不同的光谱频率分布特性, 需要根据测量光谱的频率特性来选择合适的色散模型. 文献[21]以单一频点的复折射率作为初值, 无法拟合不同特性的反射率谱. 实验证明, 金属太赫兹/远红外反射率谱满足Drude经典介电模型[15]. 根据(4)式, Drude模型中的等离子频率 ω_p 和碰撞频率 γ_0 是确定介电模型的关键参数. 由于 ω_p 和 γ_0 无法通过实验直接获得, 因而采用材料测量反射率谱来进行优化反演计算. 使用遗传算法, 通过确定目标函数(6)式来反演未知参数的最优解[22]:

$$\zeta = \sum_{\omega=\omega_1}^{\omega_2} \left(\frac{R_m(\omega) - R_n(\omega)}{R_m(\omega)} \right)^2. \quad (6)$$

文献[16]中测量了金属Al在亚毫米波段的反射率谱, 以4.0—40 THz频段为例(如图2所示), 结合遗传算法, 反演最优的 ω_p 和 γ_0 , 设定遗传参数, 采用二进制的编码方法, 变量的2进制位数为20, 最大迭代代数为1200代, 初始种群数目为80, 选择概率为0.9, 重组概率为0.7, 目标函数(6)式于500代收敛于0, 等离子频率的收敛结果为 $\omega_p = 6194.49$ THz, 碰撞频率为 $\gamma_0 = 41.76$ THz, 如图2所示.

根据图2反演的最优 ω_p 和 γ_0 , 代入(5)式中, 获得Al的Drude反射率拟合谱. 如图3所示, 反射率拟合谱与测量谱符合. 采用同样的方法, 对傅里

叶光谱仪测量的反射率谱进行平滑滤波. 图4(a)和图4(b)为利用远红外源测量的4—20 THz铝和铜的反射率谱, 图4(c)和图4(d)为利用中红外源测量的15—40 THz的反射率谱. 由于中红外源信噪比较高, 因而测量的反射光谱相对平滑. 采用(6)式对图4中反射率测量谱进行平滑, 反演的最优 ω_p 和 γ_0 如表1所列.

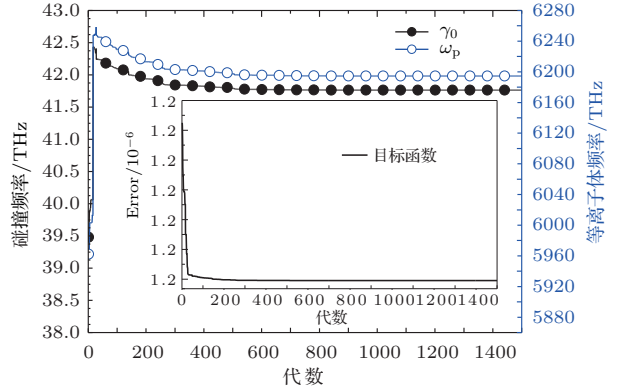


图2 反演的碰撞频率和等离子频率
Fig. 2. Inversed damping frequency and plasma frequency.

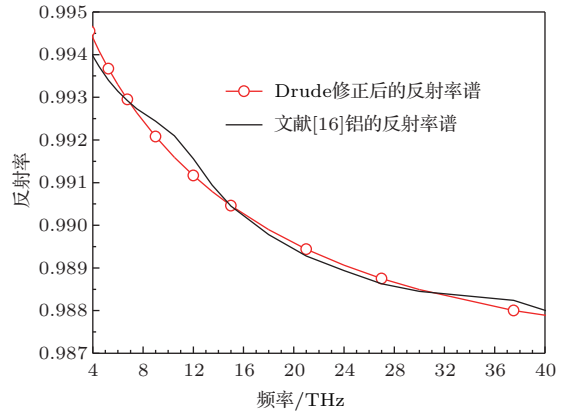


图3 文献[16]中Al的反射率测量谱及Drude修正谱
Fig. 3. Reflection spectra from Ref. [16] and its smoothed Drude spectra.

表1 使用遗传算法拟合合金铝和合金铜的等离子频率和碰撞频率

Table 1. Optimized plasma frequency and damping frequency of Al alloy and Cu alloy using genetic algorithm.

材料	频段 f /THz	γ_0 拟合值/THz	ω_p 拟合值/THz
Al	4—20	0.665 ± 0.005	133.3 ± 1.0
	15—40	0.0949 ± 0.0000	48.1894 ± 0.000
Cu	4—20	11.6538 ± 0.001	1512.22 ± 0.01
	15—40	51.328 ± 0.005	6405.8 ± 0.8

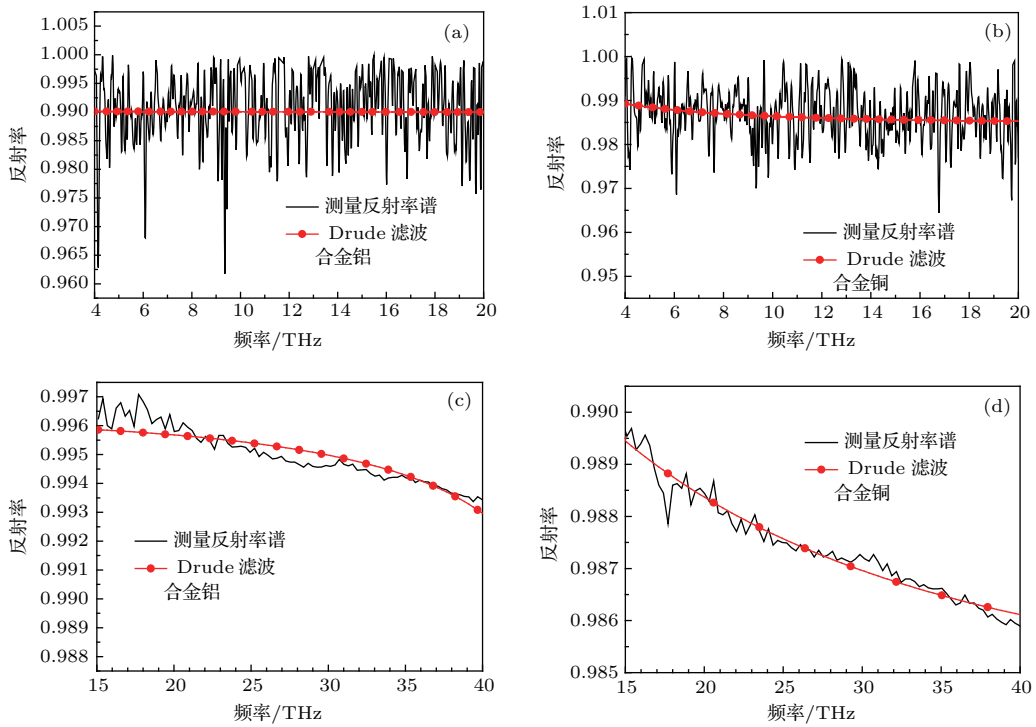


图4 合金铝和合金铜的测量反射率谱及修正谱 (a) 合金铝4—20 THz; (b) 合金铜4—20 THz; (c) 合金铝15—40 THz; (d) 合金铜15—40 THz

Fig. 4. Measured and smoothed reflection spectra of Al alloy and Cu alloy: (a) Al alloy from 4–20 THz; (b) Cu alloy from 4–20 THz; (c) Al alloy from 15–40 THz; (d) Cu alloy from 15–40 THz.

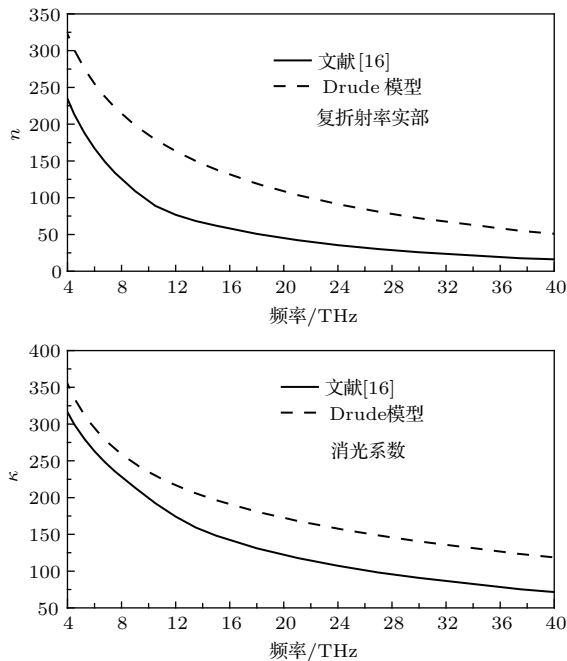


图5 文献[16]中Al拟合复折射率与实测结果的对比

Fig. 5. Comparison of the measured and fitted complex refractivity of Al in Ref. [16].

将表1计算的Drude参数代入到(5)和(1)式, 获得优化后的反射率谱. 如图4所示, 优化后的Drude反射率谱消除了测量反射率谱的噪声起伏, 谱线的变化趋势与测量谱符合, 为提取材料的介电

参数提供了数据基础.

但是基于反射率谱反演的 ω_p 和 γ_0 在宽频谱范围内无法精确拟合材料的复折射率. 将图2中拟合的等离子频率和碰撞频率代入(5)式中, 获得文献[16]中金属Al的拟合复折射率, 如图5所示, 实折射率 n 和消光系数 κ 的测量值(如实线所示)与拟合值(如虚线所示)具有相同的谱线趋势, 但是单位频点上的拟合值与真实值之间存在一定的误差. 因此根据(6)式优化获得的Drude模型虽然可以拟合金属的反射率谱特性, 却无法在较宽频带内拟合材料的复折射率. 因而需要引入KK关系对测量的反射率谱进行复折射率的提取.

3 利用KK关系建立Drude色散模型

KK关系具有严格的因果性、线性和解析性, 因而相比于其他测量手段, KK关系只依赖于材料的透/反射率谱, 对实验设备的要求低, 测量频谱宽, 测量过程简单. 已知材料的反射率谱 $R(\omega)$, 通过KK积分关系(7)式得到反射系数的相位谱信息[23]:

$$\theta(\omega) = \frac{\omega}{\pi} P \int_0^\infty \frac{\ln R(\omega') - \ln R(\omega)}{\omega^2 - \omega'^2} d\omega', \quad (7)$$

其中, ω 为圆频率, P 为柯西积分主值, R 表示反射率. 反射率 R 与反射系数 r 满足如下关系:

$$R = r \cdot r^* \quad r = r_0 e^{i\theta}, \quad (8)$$

其中, r^* 表示反射系数的共轭, r_0 为反射系数振幅, θ 为反射系数相位. 当 ω' 位于测量区间 (ω_a, ω_b) , 即 $\omega_a < \omega' < \omega_b$ 时, R 为测量值, 当 $0 < \omega' < \omega_a$ 时, 采用常数外推, 令 $R(\omega') = R(\omega_a)$; 当 $\omega_b < \omega' < \infty$ 时, 采用指数外推, 令 $R(\omega') = R(\omega_b)(\omega'/\omega_b)^{-p}$, p 为外推指数因子. 由 (9) 式求得材料的折射率和消光系数:

$$n(\omega) = \frac{1 - R(\omega)}{R(\omega) - 2\sqrt{R(\omega)} \cos \theta(\omega) + 1},$$

$$\kappa(\omega) = \frac{2\sqrt{R(\omega)} \sin \theta(\omega)}{R(\omega) - 2\sqrt{R(\omega)} \cos \theta(\omega) + 1}. \quad (9)$$

指数因子 p 一般取决于复折射率的定标值. 通常定标复折射率为单位频点或者有限区间的测量复折射率, 可由 THz-TDS 系统、椭圆仪等实验系统测量获得. 以图 3 中修正后的反射率谱为例, 当 $p = 0.035$ 时, 反演的复折射率与测量值高度符合 (图 6), 验证了基于修正反射率谱反演材料复折射率的准确性. 其中反演误差主要来源于反射率修正谱与测量谱的误差以及 KK 法自身积分所产生的误差.

本文以文献 [21] 中的测量复折射率作为定标值, 基于反射率修正谱 (如图 4 所示), 反演合金铝和合金铜的复折射率. 然而由于太赫兹辐射源

信噪比的局限性, 测量的反射率谱存在微小的能量损耗, 从而影响了基于 KK 法提取材料光学常数的精确性. 对比图 4(a) 和图 4(c) 以及图 4(b) 和图 4(d) 中 15—20 THz 的反射率, 对 4—20 THz 的修正反射率谱进行能量补偿, 确保同一材料相同频段内的反射率基本符合. 基于修正后的反射率谱, 图 7 和图 8 使用 KK 法反演合金铝和合金铜的 4—40 THz 的复折射率. 图 7(a) 中, $p=2.5$, 图 7(b) 中,

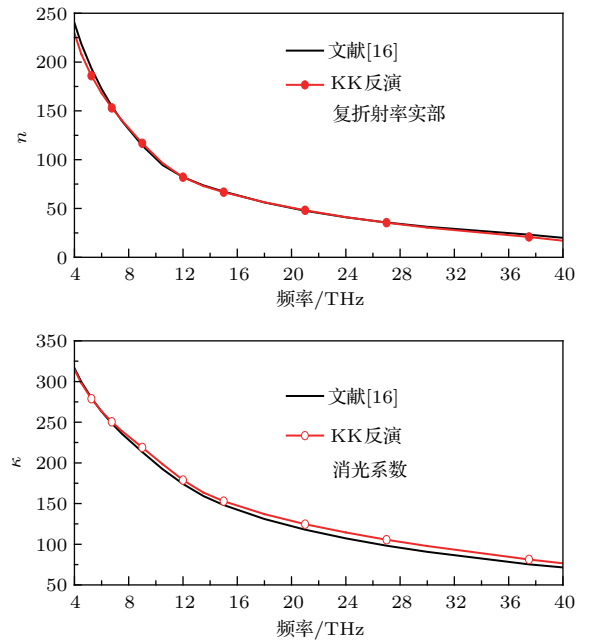


图 6 基于文献 [16] Drude 修正谱的 KK 反演复折射率
Fig. 6. Inversed complex refractivity based on the Drude smoothed reflection spectra in Ref. [16].

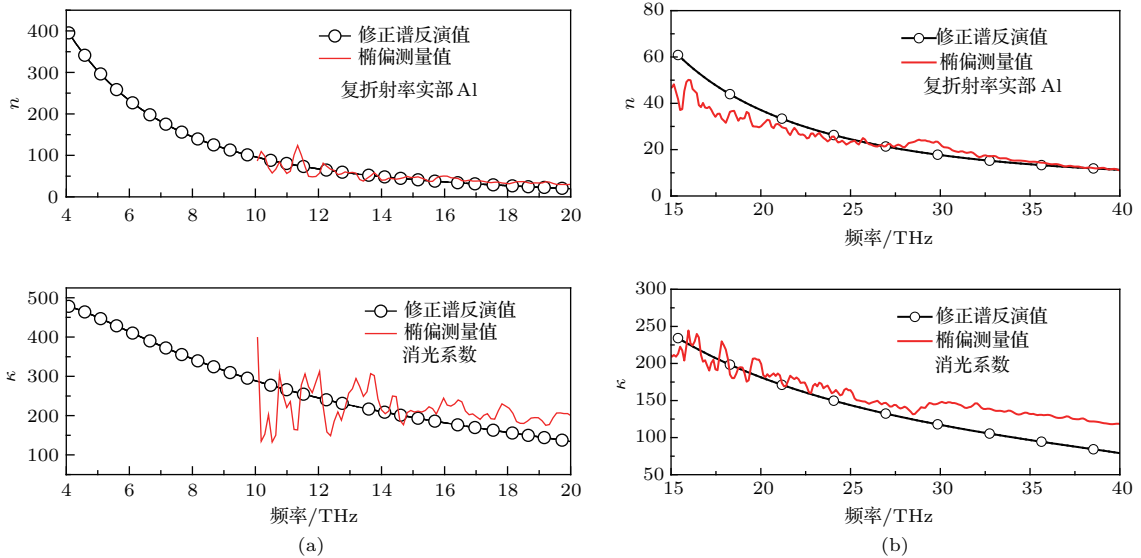


图 7 基于反射率修正谱反演合金铝的复折射率 (a) 4—20 THz; (b) 15—40 THz

Fig. 7. Inversion of complex refractivity based on the fitted reflection spectra of Al alloy: (a) 4—20 THz; (b) 15—40 THz.

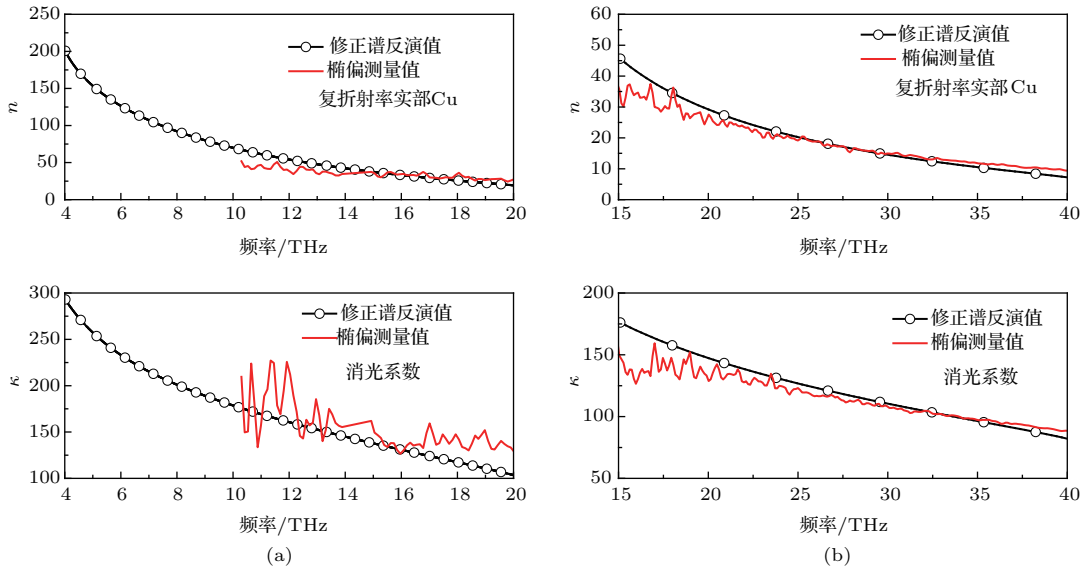


图8 基于反射率修正谱反演合金铜的复折射率 (a) 4—20 THz; (b) 15—40 THz

Fig. 8. Inversion of complex refractivity based on the fitted reflection spectra of Cu alloy: (a) 4–20 THz; (b) 15–40 THz.

$p = 0.22$, 合金铝的反演复折射率与相同区间内椭圆偏仪测量值符合. 图8(a)中, $p = 3.2$, 图8(b)中, $p = 0.4$. 指数参数 p 的差异来源于反演区间的不同以及反射率修正谱的误差. 因而, 调整指数因子 p 可减小反射率谱的测量误差对复折射率提取所造成的影响.

分析(5)式可知, 通过KK关系从反射率谱中提取的复折射率, 可以定量分析材料的微观物理参数. 根据(5)式, Drude模型的参数 γ_0 和 ω_p 可通过下式获得:

$$\begin{aligned} \gamma_0 &= \omega \varepsilon_r''(\omega) / (1 - \varepsilon_r'(\omega)), \\ \omega_p &= \sqrt{(1 - \varepsilon_r'(\omega))(\omega^2 + \gamma_0^2)}. \end{aligned} \quad (10)$$

通过已知的复折射率(复介电参数), 基于遗传算法, 建立目标函数 ζ :

$$\zeta = \left| \frac{\varepsilon_r(\omega) - \varepsilon_{re}(\omega)}{\varepsilon_{re}(\omega)} \right|^2 + \left| \frac{\varepsilon_i(\omega) - \varepsilon_{ie}(\omega)}{\varepsilon_{ie}(\omega)} \right|^2, \quad (11)$$

其中, $\varepsilon_{r,ie}$ 代表已知的复介电参数, $\varepsilon_{r,i}$ 为拟合的复介电参数. 采用遗传算法寻找最优解, 当目标函数(11)唯一收敛到最小值, 相应的Drude参数 (ω_p, γ_0) 即为最优拟合值.

由文献[24]可知, 采用(11)式获得的拟合Drude参数 (ω_p, γ_0) 随着拟合频点的不同而不同. 为了减少复介电参数测量/反演的误差对Drude参数的影响, 需要对 N 个拟合频点的最优 (ω_{pi}, γ_{0i})

求平均:

$$\omega_p = \frac{\sum_{i=1}^N \omega_{pi}}{N}, \quad \gamma_0 = \frac{\sum_{i=1}^N \gamma_{0i}}{N}. \quad (12)$$

文献[16]和文献[6]中分别列举了金属铝和铜的远红外复折射率. 其中, 铝的Drude拟合参数分别为 $\gamma_0 = 12.72$ THz, $\omega_p = 2862$ THz; 铜的拟合参数为 $\gamma_0 = 2.196$ THz, $\omega_p = 1788$ THz. 图9分别拟合了铝1.5—12 THz以及铜5.4—12 THz的复折射率, 拟合Drude参数分别为 $\gamma_0 = 13.07$ THz, $\omega_p = 2885.1$ THz 和 $\gamma_0 = 2.54$ THz, $\omega_p = 1762.1$ THz, 与文献[16]和文献[6]的Drude拟合参数基本一致. 由(5)式可知, 由于拟合的 $\omega_p \gg \gamma_0$, 因而Drude拟合参数的误差对消光系数 κ 影响较小; 同时, 铜的平均碰撞频率 γ_0 与拟合频率 ω 的值相当, 因而铜的实折射率拟合值相较于铝的实折射率拟合存在相对明显的误差.

结合椭圆偏仪测量的合金铝和合金铜的复折射率, 分别以18.6, 20.5, 28.0, 32.4 THz作为拟合频点, 获得相应的Drude参数拟合结果, 如表2所列. 由于 (ω_p, γ_0) 的最优解随着拟合频点的不同而变化, 因而, 对优化的参数分别求平均值. 其中, 合金铝的平均等离子体频率 $\omega_p = 4066.3$ THz, 平均碰撞频率 $\gamma_0 = 7.87$ THz, 合金铜的平均等离子体频率 $\omega_p = 3141.0$ THz, 平均碰撞频率 $\gamma_0 = 7.60$ THz.

表2 基于椭偏仪测量合金复折射率的Drude模型参数拟合

Table 2. The optimized Drude parameters of metals based on the measured complex refractivity by ellipsometer.

材料	拟合频点 f/THz	实测复折射率 $(\bar{n} = n + i\kappa)$	等离子频率 ω_p/THz	碰撞频率 γ_0/THz
合金铝	18.6	$34.5 + i186.1$	3650.1	7.15
	20.5	$32.6 + i182.1$	3913.7	7.58
	28.0	$21.0 + i141.7$	4101.5	8.46
	32.4	$17.4 + i138.7$	4600.0	8.27
	均值		4066.3	7.87
合金铜	18.6	$25.8 + i146.3$	2854.8	6.79
	20.5	$24.2 + i142.4$	3044.8	7.16
	28.0	$16.0 + i112.3$	3240.9	8.16
	32.4	$13.0 + i103.2$	3423.8	8.30
	均值		3141.0	7.60

相应地, 基于15—40 THz的反演复折射率(如图7(b)和图8(b)所示), 结合(11)式, 分别拟合在18.6, 20.5, 28.0, 32.4 THz下的Drude模型参数, 合金铝的平均等离子频率为3749.0 THz, 与椭偏仪的拟合误差为7.8%; 碰撞频率为8.93 THz, 与椭偏仪的拟合误差为13.5%; 合金铜的平均等离子频率为3254.0 THz, 误差为3.6%, 平均碰撞频率为8.14 THz, 误差为7.0%, 如表3所列. 其中误差主要来源是椭偏仪自身复折射率的测量误差以及KK反演复折射率的误差等.

分别将表2和表3中的Drude模型参数代入(5)式中, 计算15—40 THz下合金铝和合金铜的复折射率, 如图10所示. 其中, 空心圆线表示基于椭偏仪测量值拟合的Drude模型, 实心圆线表示基于KK反演的复折射率拟合的Drude模型. 如图10所示, 两者所获得的复折射率与椭偏仪的测量值符合, 且根据KK关系建立的Drude介电模型的拟

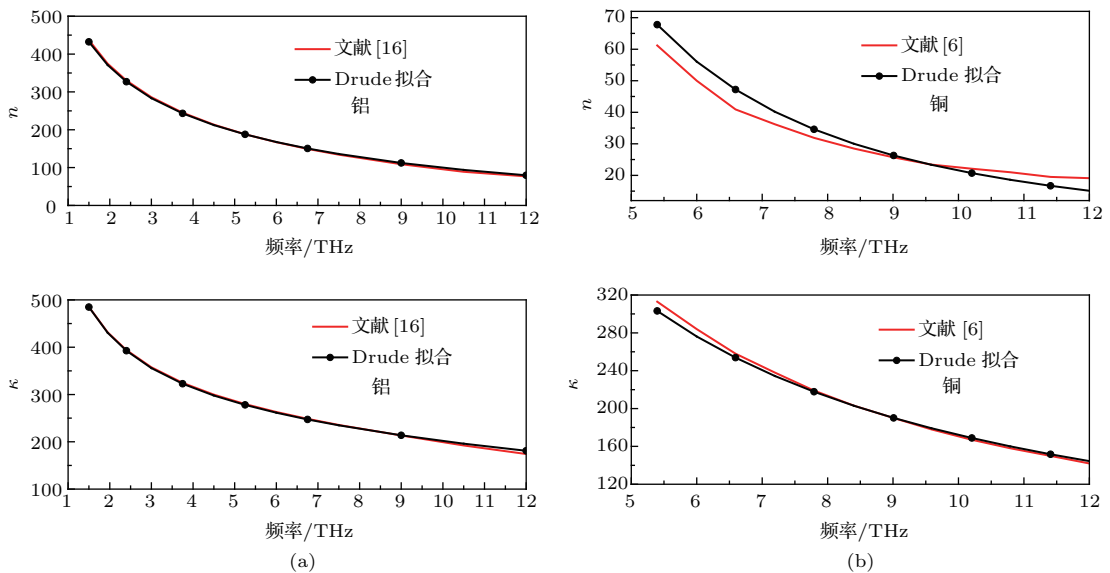


图9 基于铝和铜的文献复折射率建立Drude模型 (a) 铝; (b) 铜

Fig. 9. The Drude models optimized from the complex refractivity of References: (a) Al; (b) Cu.

表3 基于15—40 THz的反演复折射率拟合的Drude模型参数

Table 3. The optimized Drude parameters based on KK inversed complex refractivity from 15–40 THz.

材料	拟合频点 f/THz	等离子频率 ω_p/THz	误差/%	碰撞频率 γ_0/THz	误差/%	材料	等离子频率 ω_p/THz	误差/%	碰撞频率 γ_0/THz	误差/%
合金铝	18.6	3894.6	0.4	8.51	19	合金铜	3069.8	7.5	8.27	21.8
	20.5	3848.6	1.6	8.56	12.9		3148.0	3.4	8.25	15.2
	28.0	3683.3	10.1	9.04	6.8		3368.9	3.9	8.11	0.6
	32.4	3569.4	22.4	9.61	16.2		3429.2	0.1	7.91	4.7
均值		3749.0	7.8	8.93	13.5	3254.0	3.6	8.14	7.0	

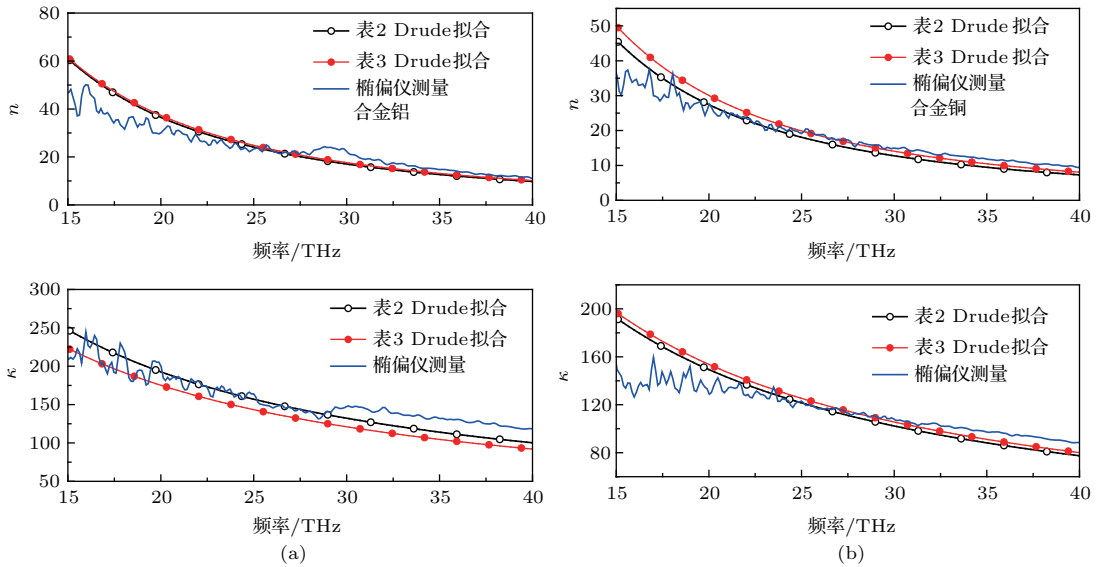


图10 Drude 拟合的复折射率与椭偏仪测量结果的比较 (15—40 THz) (a) 合金铝; (b) 合金铜

Fig. 10. Comparison of complex refractivity from Drude fitness and ellipsometer measurement (15–40 THz): (a) Al alloy; (b) Cu alloy.

合结果与椭偏仪实测值之间误差优于 20%，论证了基于 KK 反演建立的 Drude 色散模型在宽频带内分析材料复折射率的准确性。

表 4 列出了基于 4—20 THz KK 反演的复折射率 (如图 7(a) 和图 8(a) 所示) 在各个拟合频点上的 Drude 模型参数的平均值 (简称数值结果)。合金铝等离子频率的数值结果为 3435.6 THz, 碰撞频率的数值结果为 8.0 THz. 图 11 基于表 4 的 Drude 参数拟合了合金铝和合金铜在 0.1—20 THz 的复折射

率, 与 KK 反演的复折射率和椭偏仪测量的复折射率相符合。

表 4 基于 4—20 THz 反演复折射率的 Drude 模型参数拟合

Table 4. The optimized Drude parameters based on KK inversed complex refractivity in the region of 4–20 THz.

材料	ω_p /THz	γ_0 /THz	材料	ω_p /THz	γ_0 /THz
Al	3435.6	8.0	Cu	2243.8	8.91

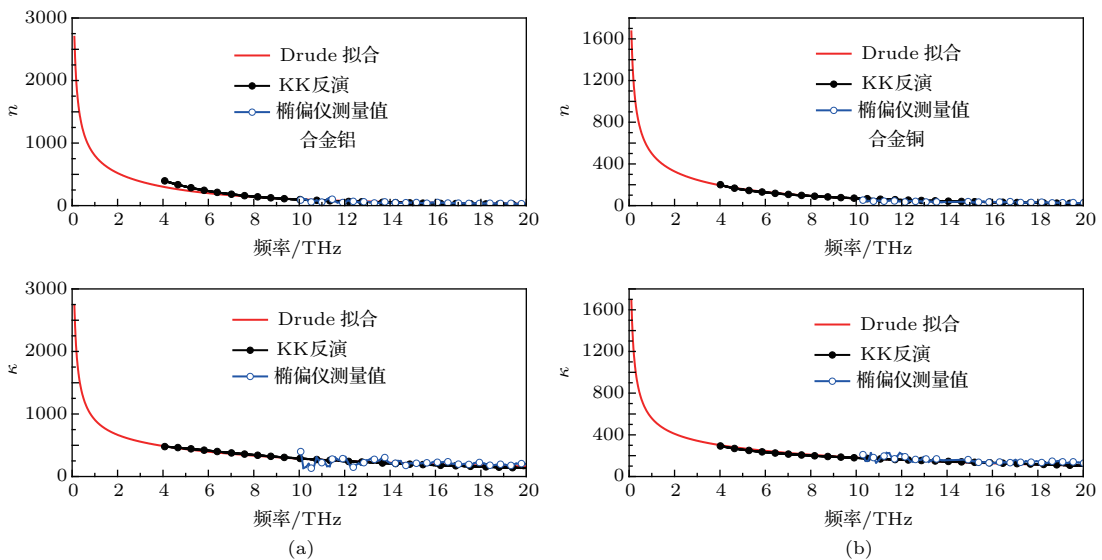


图11 Drude 拟合的复折射率与椭偏仪测量结果的比较 (0.1—20 THz) (a) 合金铝; (b) 合金铜

Fig. 11. Comparison of complex refractivity from Drude fitness and ellipsometer measurement (0.1–20 THz): (a) Al alloy; (b) Cu alloy.

如图 10 和图 11 所示, 依据 KK 关系反演的复折射率可以建立金属的 Drude 模型, 拟合结果与椭偏仪实测值符合. 该方法的准确性取决于反射率光谱与椭偏仪定标复折射率的测量精度, 反射率谱越接近于真实值, 定标复折射率精度越高, 则 KK 反演的复折射率越精确, 建立的色散模型也更加准确. 因而, 该方法也对太赫兹频段反射率谱的测量以及单频点复折射率测量实验的精度提出了更高的要求.

4 结 论

本文提出一种联合傅里叶光谱仪和远红外椭偏仪建立金属太赫兹色散模型的方法. 利用远红外椭偏仪测量的复折射率值为定标, 结合傅里叶光谱仪测量的太赫兹/远红外反射率谱, 采用反射系数幅度和相位的 KK 关系, 调整指数外推参数, 直至反演结果与椭偏仪定标复折射率符合为止. 基于遗传算法, 建立与椭偏仪实测复折射率和 KK 反演复折射率符合良好的 Drude 经典色散模型. 为了减少反射率测量谱的噪声对 KK 反演的影响, 以 Drude 色散模型为基础, 以修正反射率谱与测量谱误差最小为原则, 对反射率测量谱进行平滑去噪. 去噪后的反射率谱与测量谱符合, 消除了噪声起伏对 KK 反演的影响. KK 关系采用了高频端指数外推、低频端常数外推的方法, 其中 KK 指数因子的调整可以弥补反射率谱测量产生的能量损耗, 提高了 KK 反演的可靠性. 由于在 4 THz 以下, 反射率谱测量误差较大, 且椭偏仪所获得的定标复折射率位于远红外频段, 因而 KK 法只反演了 4—40 THz 的复折射率. 文中结合 KK 反演的复折射率, 拟合了 0.1—20 THz 频段的 Drude 模型, 获得了太赫兹低频端的色散参数, 为太赫兹色散实验和散射分析提供了理论依据. 该方法以有限频段内的实验值为基础, 获得了更宽频段的复折射率, 实现了宽频段复折射率的测量提取. 基于 KK 关系建立经典色散模型的关键在于精确的反射率谱和定标复折射率的测量 (其中定标复折射率可以由 THz-TDS 系统或太赫兹椭偏技术等获得), 测量精度越高, KK 反演越精确, 拟合的色散模型也更精确. 该方法利用了现阶段 THz 频段复折射率测量频点有限的特点, 将有限频段色散特性的研究拓展到更宽频段. 由于 KK 关系可以更好地反映材料的带间跃迁效应, 因

而该方法可通过选择不同的色散模型, 适应不同材料 (如半导体、介质等) 的色散模型拟合, 为太赫兹材料散射特性和太赫兹雷达成像技术的发展提供了研究基础.

参考文献

- [1] Li Z, Cui T J, Zhong X J, Tao Y B, Lin H 2009 *IEEE Antenn. Propag. Mag.* **51** 39
- [2] Piesiewicz R, Jansen C, Mittleman D, Kleine-Ostmann T, Koch M, Kürner T 2007 *IEEE Trans. Antenn. Propag.* **55** 3002
- [3] Chen Q 2012 *M. S. Thesis* (Harbin: Harbin Institute of Technology) (in Chinese) [陈琦 2012 硕士学位论文 (哈尔滨: 哈尔滨工业大学)]
- [4] Wang L, Zhou Q 2007 *Coll. Phys.* **26** 48 (in Chinese) [王磊, 周庆 2007 大学物理 **26** 48]
- [5] Su J, Sun C, Wang X Q 2013 *Optron. Lasers* **24** 408 (in Chinese) [苏杰, 孙诚, 王晓秋 2013 光子·激光 **24** 408]
- [6] Ordal M A, Bell R J, Alexander Jr R W, Long L L, Querry M R 1985 *Appl. Opt.* **24** 4493
- [7] Ordal M A, Long L L, Bell R J, Bell S E, Bell R R, Alexander Jr R W, Ward C A 1983 *Appl. Opt.* **22** 1099
- [8] Loewenstein E V, Smith D R, Morgan R L 1973 *Appl. Opt.* **12** 398
- [9] Ohba T, Ikawa S I 1988 *J. Appl. Phys.* **64** 4141
- [10] Spitzer W G, Miller R C, Kleinman D A, Howarth L E 1962 *Phys. Rev.* **126** 1710
- [11] Spitzer W G, Kleinman D A 1961 *Phys. Rev.* **121** 1324
- [12] Hass M, Henvis B W 1962 *J. Phys. Chem. Solids* **23** 1099
- [13] Willis K, Knezevic I, Hagness S C 2013 *Radio Science Meeting (Joint with AP-S Symposium) USNC-URSI Orlando, USA, July 7–13, 2013* p154
- [14] Willis K J, Hagness S C, Knezevic I 2011 *J. Appl. Phys.* **110** 063714
- [15] Lucyszyn S 2004 *IEEE Proc. -Microw. Antenn. Propag.* **151** 321
- [16] Ordal M A, Bell R J, Alexander Jr R W, Newquist L A, Querry M R 1988 *Appl. Opt.* **27** 1203
- [17] Silfsten P, Kontturi V, Ervasti T, Ketolainen J, Peiponen K E 2011 *Opt. Lett.* **36** 778
- [18] Duvillaret L, Garet F, Coutaz J L 1996 *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron* **2** 739
- [19] Yamashita T, Suga M, Okada T, Irisawa A, Imamura M 2015 *40th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz) Hong Kong, China, August 23–28, 2015* p1
- [20] Kirley M P, Booske J H 2015 *IEEE Trans. THz Sci. Technol.* **5** 1012
- [21] Mou Y, Wu Z S, Gao Y Q, Yang Z Q, Yang Q J 2017 *Infrared Phys. Technol.* **80** 58
- [22] Cheng X H, Tang L G, Chen Z T, Gong M, Yu T J, Zhang G Y, Shi R Y 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 5875 (in Chinese) [程兴华, 唐龙谷, 陈志涛, 龚敏, 于彤军, 张国义, 石瑞英 2008 物理学报 **57** 5875]

[23] Lucarini V, Peiponen K E, Saarinen J J, Vartiainen E M 2005 *Kramers-Kronig Relations in Optical Materials Research* (New York: Springer Berlin Heidelberg) pp27–50

[24] Wang R J, Deng B, Wang H Q, Qin Y L 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 134102 (in Chinese) [王瑞君, 邓斌, 王宏强, 秦玉亮 2014 物理学报 **63** 134102]

Establishment of THz dispersion model of metals based on Kramers-Kronig relation*

Mou Yuan¹⁾ Wu Zhen-Sen^{1)†} Zhang Geng¹⁾ Gao Yan-Qing²⁾ Yang Zhi-Qiang³⁾

1) (Collaboration Innovation Center of Information Sensing and Understanding, School of Physics and Optoelectronic Engineering, Xidian University, Xi'an 710071, China)

2) (National Laboratory of Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China)

3) (School of Optoelectronic Engineering, Xi'an Technological University, Xi'an 710021, China)

(Received 12 January 2017; revised manuscript received 30 March 2017)

Abstract

The extraction of terahertz dispersion parameters is confined in a limited region due to the limitation of the existing THz techniques. A method of studying the dispersion model of metals from the measurements of reflection spectrum and analysis of Kramers-Kronig (KK) relation is proposed. The reflection spectrum is measured by Vertex 80V Fourier transform spectrometer. In order to eliminate the signal noise of measured reflection spectrum, the measured spectrum is smoothed by Drude estimation. Using the smoothed reflection spectra of copper (Cu) alloy and aluminum (Al) alloy in a range of 4–40 THz, the complex refractivities are inversed based on the KK relation of amplitude and phase of reflective coefficient. The constant extrapolations at lower frequencies and the exponential extrapolation at higher frequencies are adopted in the KK integration. The exponential extrapolation index is adjusted according to the calibrating complex refractivity measured from far-infrared ellipsometer. According to the inversed complex refractivity, the plasma frequency and damping frequency in Drude model are optimized using the genetic algorithm. The objective function is defined as the error between the fitted complex refractivity and KK inversion. Since the optimal plasma frequency and damping frequency are different for different fitting frequencies, the obtained Drude parameters are averaged in order to reduce the influences of errors from KK inversion, measured reflection spectrum and calibrations. The complex refractivity indexes in a range from 15 THz to 40 THz, calculated by the established Drude model, are in good agreement with the measured calibrations from ellipsometer, which demonstrates the accuracy of the established Drude dispersion model. The reflection spectra below 4 THz are greatly distorted due to the signal noise, and the calibrating refractivity is located in the far infrared region, thus the complex refractivity is inversed in a region of 4–40 THz by KK algorithm. The complex refractivity indexes in a range of 0.1–20 THz, obtained by the proposed scheme, are for the vacancy, which will provide great support for the dispersion analysis in the whole terahertz gap. The procedures are helpful for extrapolating the dispersion information to terahertz band from the far infrared region. The scheme takes the advantage of the spectrometer and ellipsometer, and it requires high experimental precisions of reflection spectrum and calibrating refractivity. In addition, the scheme is adaptive to both metals and nonmetals by applying proper dispersion model which depends on the property of the reflection spectrum. The established model determines the microscopic dispersion parameters of material, which provides great support for the investigation of terahertz dispersion analysis, scattering mechanisms and imaging processes.

Keywords: terahertz, far infrared, Drude model, Kramers-Kronig relation

PACS: 02.30.Zz, 07.60.-j, 78.20.-e, 78.20.Ci

DOI: 10.7498/aps.66.120202

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61571355).

† Corresponding author. E-mail: wuzhs@mail.xidian.edu.cn