

基于波前倾斜的太赫兹单次测量研究

杨磊, 侯磊*, 张利昊, 施卫**

西安理工大学陕西省超快光电技术与太赫兹科学重点实验室, 陕西 西安 710048

摘要 太赫兹单次测量技术可以对一些超快不可逆过程进行快速测量, 在蛋白质变性、核爆模拟分析等领域具有广阔的应用前景。从飞秒激光放大器发出的光脉冲分成两束并分别经过两块光栅产生波前倾斜, 一束作为抽运光激发铌酸锂晶体, 基于光整流效应产生高功率太赫兹波; 另一束作为探测光, 采用正交平衡探测法探测。利用该光路产生太赫兹脉冲并对其进行单次测量, 系统的时间窗口为 16.8 ps, 频谱范围覆盖 0.1~1.6 THz。

关键词 太赫兹技术; 测量; 太赫兹波; 波前倾斜; 单次测量

中图分类号 TN012

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201946.0614028

Single-Shot Measurement of Terahertz Pulses Based on Tilted Wavefront

Yang Lei, Hou Lei*, Zhang Lihao, Shi Wei**

Key Laboratory of Ultrafast Photoelectric Technology and Terahertz Science in Shaanxi,
Xi'an University of Technology, Xi'an, Shaanxi 710048, China

Abstract Single-shot measurement of terahertz pulses is mainly used to rapidly measure the terahertz spectra during ultrafast irreversible processes. It has broad prospects for applications in protein denaturation, nuclear-explosion-simulation analysis, and other fields. The optical pulse from a femtosecond laser amplifier is divided into two beams and passes through two gratings to generate a tilted wavefront. One beam is used as the pump light to excite a lithium niobate crystal and generate a high-power terahertz wave based on the optical-rectification effect. The other beam is used as the probe light. We use the crossed and balanced detection method. After the terahertz pulses are generated, we implement a single-shot measurement of terahertz pulses using the proposed light paths. The time window of the system ranges up to 16.8 ps, and the spectral range is 0.1-1.6 THz.

Key words terahertz technology; measurement; terahertz waves; tilted wavefront; single-shot measurement

OCIS codes 120.1880; 230.2090; 300.6495

1 引言

太赫兹波是频率在 0.1~10.0 THz (1 THz = 10^{12} Hz) 范围内的电磁辐射, 相较于其他波段的电磁波, 具有特殊的光谱特性, 在医疗诊断、食品检测、天文、无损检测等众多领域具有重要的科学价值及应用前景^[1-5]。但是, 传统的太赫兹时域光谱系统需要通过延迟线移动, 实现逐点扫描的取样测量, 因此获得一个完整太赫兹脉冲时域波形的时间较长, 一般需要几秒到几十秒。进行样品检测时, 要求待测样品性能稳定, 可进行重复测量, 该方法无法测量诸如生物蛋白质分子变性、物质损伤等快速变

化的不可逆过程^[6]。在对材料不可逆超快动力学过程的光谱研究中, 需要对太赫兹脉冲进行单次测量。目前, 国内外科研工作者已经实现了多种太赫兹单次测量方法, 如啁啾脉冲光谱编码法^[7-8]、互相关法^[9]、多色平衡探测法^[10]、棱镜色散法^[11]等, 但这些方法都有一些不足, 比如, 啁啾脉冲光谱编码法的时间分辨率较低, 互相关法会造成信号低频部分丢失, 多色平衡探测法的光路复杂, 棱镜色散法的时间窗口较窄。近年来, 相关学者利用闪耀光栅实现了对太赫兹脉冲的单次测量^[12-13]。本文基于光栅倾斜波前相位匹配技术产生了高功率太赫兹脉冲, 利用闪耀光栅将探测光

收稿日期: 2019-02-01; 修回日期: 2019-03-08; 录用日期: 2019-04-01

基金项目: 国家自然科学基金重大科学仪器研制专项(批准号: 61427814)、国家自然科学基金(61575161)

* E-mail: houleixaut@126.com; ** E-mail: swshi@mail.xaut.edu.cn

在空间上展宽,通过分析经过探测晶体后的探测光偏振态的改变,实现了对太赫兹时域脉冲的单次测量,并得到了具有较高信噪比的测量结果。

2 实 验

2.1 基于波前倾斜的太赫兹单次测量系统

基于波前倾斜的太赫兹单次测量系统光路如图 1 所示,所用激光器(Spitfire Ace-100F 型,光谱物理公司,美国)的最大单脉冲能量为 5 mJ,中心波长为 800 nm,重复频率为 1 kHz,近于无线性啁啾脉宽为 100 fs。激光脉冲经过分束镜(BS)分为抽运光和探测光。抽运光经过第一个半波片(HWP),偏振方向变为水平方向,这时闪耀光栅的一级衍射效率达到最大,约为 70%。接着,由光栅的-1 级衍射产生倾斜波前,再由第二个 HWP 将偏振方向调回垂

直方向,以使抽运光在铌酸锂(LiNbO₃)晶体中具有较高的太赫兹波产生效率;在第二个 HWP 后,放置一个焦距为 7.5 cm 的透镜,调节其位置使抽运光的波前倾斜角满足相位匹配条件并入射至 LiNbO₃ 晶体产生太赫兹波。探测光同样经过一个 1200 line·mm⁻¹光栅产生波前倾斜,激光入射角为 23.56°,分别经过偏振片 P1、焦距为 10 cm 的透镜 L2 及氧化铟锡(ITO)薄膜玻璃,与经过 4 个离轴抛物面镜 OPM1~OPM4 以及 ITO 反射聚焦的太赫兹波重叠于探测晶体 1 mm 的 ZnTe 上,此时,探测光的偏振态被太赫兹电场调制。经调制后的探测光经过四分之一波片(QWP)后,再经过聚焦透镜 L3 及偏振片 P2,成像于电荷耦合元件(CCD)上。本文采用正交偏振探测,所以探测光路使用了两个偏振片。

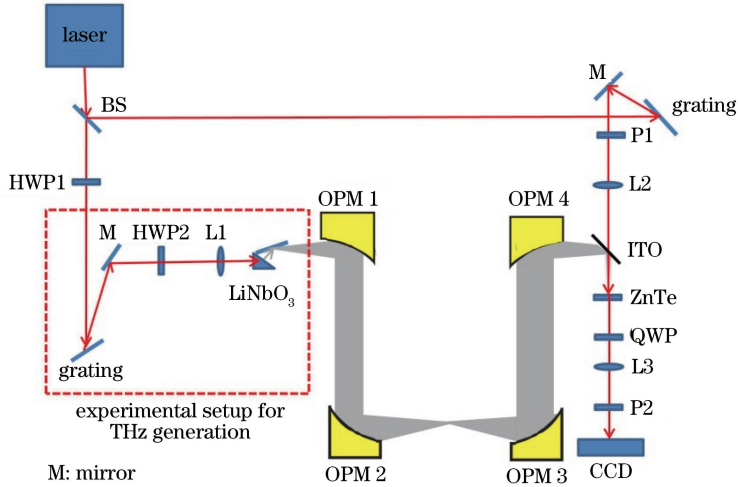


图 1 基于波前倾斜的太赫兹瞬态测量系统光路图

Fig. 1 Optical path of terahertz transient measurement system based on tilted wavefront

2.2 倾斜波前产生原理

利用光栅产生倾斜波前的原理如图 2 所示。直径为 D 的激光以入射角 α 照射闪耀光栅,其一级衍射光满足

$$\sin \alpha + \sin \beta = \frac{\lambda}{d}, \quad (1)$$

式中: β 为一级衍射角; λ 为入射光波长; d 为光栅常数。光斑上边沿先于下边沿抵达光栅,经光栅衍射后,上边沿比下边沿更超前到达下一个光学元件,当入射光上边沿到达如图 2 所示的 h 位置时,下边沿光程超前 $a+b$, $a+b$ 为入射光光斑上边沿与下边沿到达同一相位面的光程差,如图 2 中黑色与蓝色位置所示,此时产生了倾斜波前。图中, γ 为光栅后的激光波前倾斜角。

如图 2 所示,光栅上的光斑面积为

$$W = \frac{D}{\cos \alpha}, \quad (2)$$

所以

$$a = W \sin \beta = \frac{D \sin \beta}{\cos \alpha}, \quad (3)$$

$$b = W \sin \alpha = \frac{D \sin \alpha}{\cos \alpha}, \quad (4)$$

$$h = W \cos \beta = \frac{D \cos \beta}{\cos \alpha}, \quad (5)$$

根据(1)~(5)式,可求得 γ 为

$$\gamma = \arctan\left(\frac{a+b}{h}\right) = \arctan\left(\frac{\sin \alpha + \sin \beta}{\cos \beta}\right) = \arctan\left(\frac{\lambda}{d \cos \beta}\right). \quad (6)$$

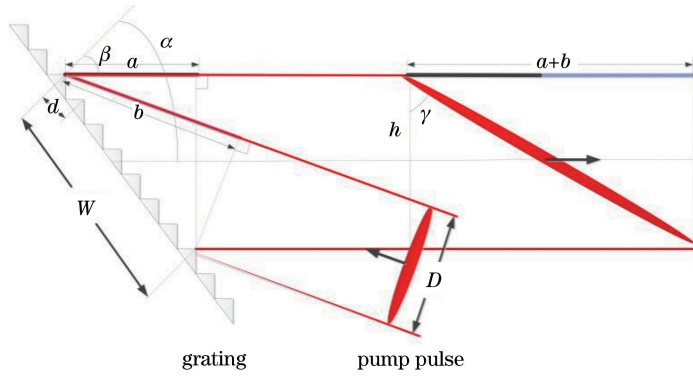


图 2 利用光栅产生激光倾斜波前的示意图

Fig. 2 Schematic of generation of tilted wavefront using grating

2.3 基于 LiNbO₃ 光整流效应产生高功率太赫兹波

采用具有较高电光系数的非线性晶体,利用光整流的方法产生太赫兹波,其核心是使入射光的群速度与产生的太赫兹波的相速度大小相等。具有较高非线性光学系数和品质因子的 LiNbO₃ 晶体,在红外和可见光波段的折射率比太赫兹波段的折射率要小很多,无法实现共线相位匹配。因此,必须采用波前倾斜技术来实现非共线相位匹配。采用反射式闪

耀光栅实现入射激光波前倾斜技术,是一种行之有效的解决非线性相位匹配的方案,其光路见图 1 中虚线部分。

由波前倾斜的抽运光在 LiNbO₃ 晶体中产生的太赫兹波子极化波的相速为 ν_{THz} ,其传播方向垂直于倾斜波前,因此,太赫兹波的传播方向与抽运光的传播方向的夹角与抽运光波前的倾斜角 γ 相同,如图 3 所示。

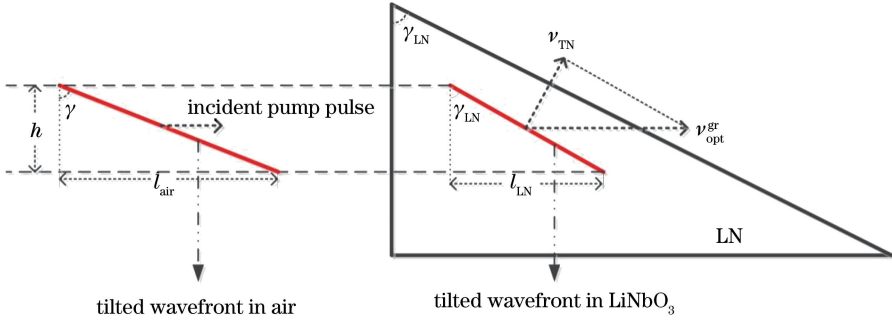


图 3 波前倾斜技术产生太赫兹波的示意图

Fig. 3 Schematic of terahertz pulse generation by tilted wavefront technology

由图 3 中几何关系可推导出基于波前倾斜的非共线相位匹配条件如(7)、(8)式所示,其中, l_{air} 为入射光光斑在空气中上下边沿到达同一相位面的光程差, $\nu_{\text{opt}}^{\text{gr}}$ 为抽运光在 LiNbO₃ 晶体内的群速度, γ_{LN} 为抽运光在 LiNbO₃ 晶体内的波前倾斜角, l_{LN} 为入射光光斑在晶体内上下边沿到达同一相位面的光程差。 ν_{THz} 可表示为

$$\nu_{\text{THz}} = \nu_{\text{opt}}^{\text{gr}} \cos \gamma_{\text{LN}}, \quad (7)$$

即

$$n_{\text{THz}} \cos \gamma_{\text{LN}} = n_{\text{opt}}^{\text{gr}}, \quad (8)$$

式中: n_{THz} 为太赫兹波在 LiNbO₃ 晶体内的折射率; $n_{\text{opt}}^{\text{gr}}$ 为抽运光在 LiNbO₃ 晶体内的折射率。由(7)、(8)式可看出,可通过抽运光的波前倾斜角度调整来

实现 LiNbO₃ 晶体内入射光与辐射太赫兹波的非共线相位匹配。

对于 LiNbO₃ 晶体,在 1 THz 处 $n_{\text{THz}} = 5.11$ ^[14], 在 800 nm 处折射率 $n_{\text{opt}} = 2.175$ 对应的群折射率为 $n_{\text{opt}}^{\text{gr}} = 2.264$ ^[15], 要实现相位匹配,抽运光在 LiNbO₃ 晶体内的波前倾斜角应为

$$\gamma_{\text{LN}} = \arccos\left(\frac{\nu_{\text{THz}}}{\nu_{\text{opt}}^{\text{gr}}}\right) = \arccos\left(\frac{n_{\text{opt}}^{\text{gr}}}{n_{\text{THz}}}\right) = \arccos\left(\frac{2.25}{5.11}\right) = 63.7^\circ. \quad (9)$$

假设具有波前倾斜的入射激光的光斑直径为 h , 当满足非共线相位匹配时,入射激光在空气中的波前倾斜角为 γ , 则

$$\tan \gamma = l_{\text{air}}/h. \quad (10)$$

当光从空气进入折射率为 $n_{\text{opt}}^{\text{gr}}$ 的 LiNbO_3 晶体后,入射光光斑在晶体上下边沿到达同一相位面的光程差为 l_{LN} ,则

$$\tan \gamma = \frac{l_{\text{air}}}{h} = \frac{l_{\text{LN}} n_{\text{opt}}^{\text{gr}}}{h} = n_{\text{opt}}^{\text{gr}} \tan \gamma_{\text{LN}} =$$

$$\frac{n_{\text{opt}}^{\text{gr}} \sqrt{n_{\text{THz}}^2 - n_{\text{opt}}^{\text{gr}2}}}{n_{\text{opt}}^{\text{gr}}} = \sqrt{n_{\text{THz}}^2 - n_{\text{opt}}^{\text{gr}2}} = 4.58, \quad (11)$$

即

$$l_{\text{air}} = 4.58h, \quad (12)$$

可以求出相位匹配时入射激光的波前倾斜在空气中的倾斜角 $\gamma = 77.68^\circ$ 。

但仅由光栅产生的波前倾斜角 γ 很难立即满足在 LiNbO_3 晶体光整流产生太赫兹波过程中的相位匹配条件,这里使用单透镜成像系统来实现光整流过程中的相位匹配。选取合适的透镜系统以及与之相匹配的光栅入射角即可满足 LiNbO_3 晶体中太赫兹波与激光的波前倾斜的非共线相位匹配条件。

由传统电光采样方法测得的太赫兹波的时域波形如图 4 所示,信噪比约为 7000,经换算可得探测晶体处峰值场电场强度约为 $90 \text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1}$, ZnTe 晶体的电光调制度约为 9%。

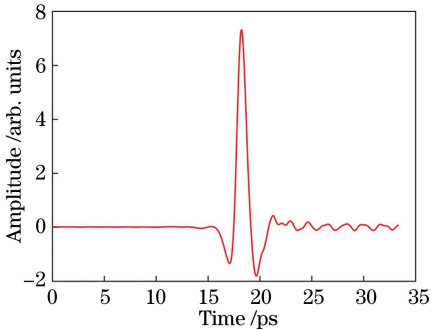


图 4 电光采样测得太赫兹波的时域波形

Fig. 4 Terahertz time-domain waveform measured by electro-optic sampling

2.4 基于倾斜波前对太赫兹脉冲进行单次测量

对太赫兹脉冲进行的单次测量同样是基于探测晶体 (ZnTe) 的非线性效应,在太赫兹电场作用下 ZnTe 晶体中产生双折射效应,引起探测光偏振态的变化。为了实现对太赫兹脉冲的单次测量,需要将探测光在空间上进行展览。利用倾斜波前对太赫兹脉冲进行单次测量的原理示意图如图 5 所示。

探测光在经过光栅后具有倾斜的波前,在空间上被展览,使一个探测光脉冲与单个太赫兹脉冲在探测晶体的不同时刻相遇,从而使其与太赫兹脉冲在不同时刻的相遇转变成在 ZnTe 晶体上不同位置处的相

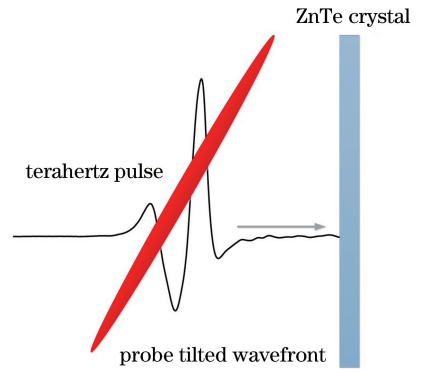


图 5 利用倾斜波前对太赫兹脉冲进行单次测量的原理示意图

Fig. 5 Principle of single-slot measurement of terahertz pulse based on tilted wavefront

遇,并用 CCD 记录。在 CCD 的曝光时间内,具有倾斜波前的探测光脉冲的不同位置先后到达 CCD,通过分析采集到光斑的变化,得到太赫兹的电场波形。本实验采用正交平衡探测,第一个偏振片作为起偏器,第二个偏振片作为检偏器,调整偏振片,使通过它们照射到 CCD 的激光较强,但不能饱和。利用 CCD 实际采集数据时,首先在没有太赫兹波时,采集一幅图像作为背景;然后,在太赫兹波照射时,再采集图像,减去背景,即可得到太赫兹脉冲单次测量的结果。

3 结果与讨论

CCD 在采集背景时,激光不能太强,否则将出现过饱和,导致信号波峰部分的变化无法显现,同时增大背景噪声;激光也不能太弱,因为激光强度太小会导致太赫兹时域信号波谷部分的变化无法显现。调节偏振片角度,每隔 15° 采集一次,CCD 采集到如图 6 所示的不同的太赫兹时域信号原始图像,图 6(a)~(f) 分别对应偏振片角度 $0^\circ, 15^\circ, 30^\circ, 45^\circ, 60^\circ, 75^\circ$,图中深蓝色区域为太赫兹时域波形的波谷,红黄色区域为其波峰。可以看出不同偏振片角度下,CCD 背景噪声水平不同,噪声较大时,信号的波峰波谷部分不明显,即信号信噪比不高。

调节偏振片到最佳角度 75° ,同时增加抽运光能量,即增加太赫兹单脉冲能量,CCD 可测得如图 7 所示的太赫兹时域信号原始图像。将此数据沿纵向累加,可得太赫兹时域信号对应位置的相对强度。但此横轴为像素点,经换算,可得到两个像素点的间隔约为 21 fs,因此,时间窗口约为 16.8 ps,太赫兹时域波形如图 8 所示,信噪比约为 530。对时域数据进行傅里叶变换可得其频谱,如图 9 所示。频谱分辨率小于 0.06 THz,频谱范围为 0.1~1.6 THz。

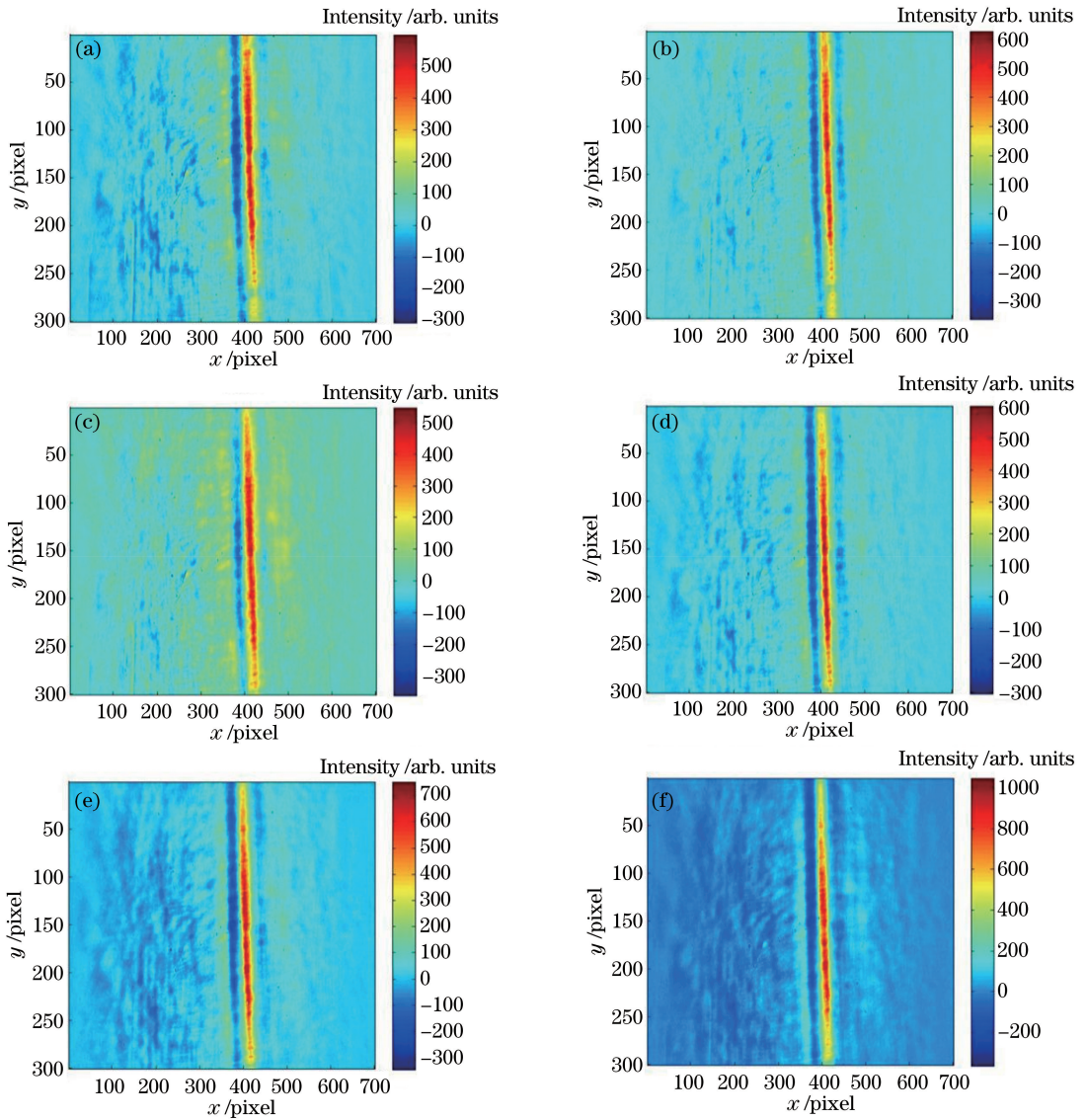


图 6 不同偏振片角度下 CCD 所测得的太赫兹时域信号原始图像。(a) 0° ; (b) 15° ; (c) 30° ; (d) 45° ; (e) 60° ; (f) 75°

Fig. 6 Raw images of terahertz time-domain signal measured by CCD at different angles of polarizers.

(a) 0° ; (b) 15° ; (c) 30° ; (d) 45° ; (e) 60° ; (f) 75°

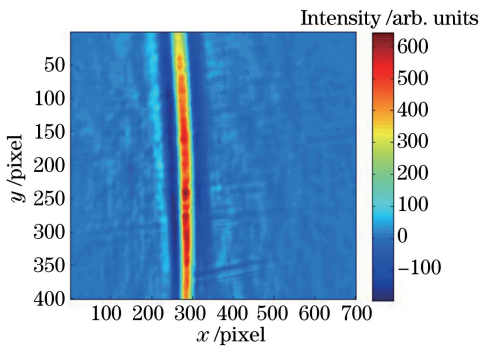


图 7 CCD 所测得的太赫兹时域信号原始图像

Fig. 7 Raw image of terahertz time-domain signal measured by CCD

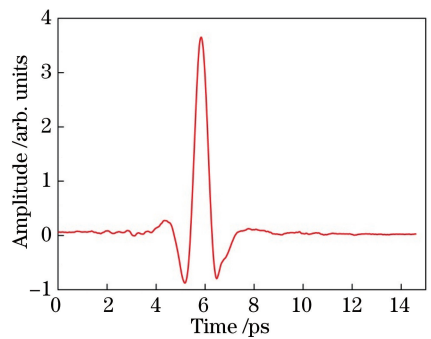


图 8 从图 7 中提取的时域波形

Fig. 8 Temporal waveform extracted from Fig. 7

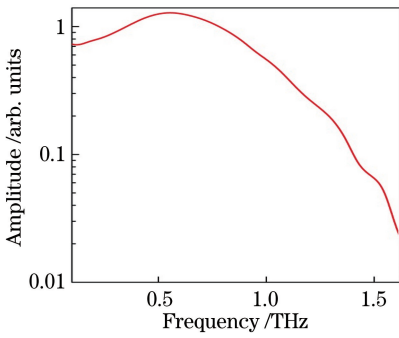


图 9 太赫兹脉冲瞬态测量频谱

Fig. 9 Transient measurement spectrum of terahertz pulse

4 结 论

利用飞秒激光放大器搭建了太赫兹单次测量系统,利用 LiNbO_3 晶体并基于光整流效应产生高功率太赫兹波,利用光栅产生了具有倾斜波前的探测光,采用正交平衡探测的方法,在 CCD 上获得了太赫兹时域信号的单次测量结果。获得的时域波形的信噪比可达 530,时间窗口为 16.8 ps,频谱范围 0.1~1.6 THz,分辨率小于 0.06 THz。若能提高太赫兹波的单脉冲能量并降低 CCD 的背景噪声,则瞬态测量系统的信噪比将得到提高,从而使单次测量系统的实用性大大提高,促进其在单次不可逆超快动力学过程太赫兹光谱测量方面的应用。

参 考 文 献

- [1] Fitzgerald A J, Berry E, Zinovev N N, *et al.* An introduction to medical imaging with coherent terahertz frequency radiation[J]. *Physics in Medicine and Biology*, 2002, 47(7): R67-R84.
- [2] Dai J M, Liu J L, Zhang X C. Terahertz wave air photonics: terahertz wave generation and detection with laser-induced gas plasma[J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2011, 17(1): 183-190.
- [3] Federici J, Moeller L. Review of terahertz and subterahertz wireless communications[J]. *Journal of Applied Physics*, 2010, 107(11): 111101.
- [4] Lee Y K, Choi S W, Han S T, *et al.* Detection of foreign bodies in foods using continuous wave terahertz imaging[J]. *Journal of Food Protection*, 2012, 75(1): 179-183.

- [5] Liu H B, Zhong H, Karpowicz N, *et al.* Terahertz spectroscopy and imaging for defense and security applications[J]. *Proceedings of the IEEE*, 2007, 95(8): 1514-1527.
- [6] Schmuttenmaer C A. Exploring dynamics in the far-infrared with terahertz spectroscopy[J]. *Chemical Reviews*, 2004, 104(4): 1759-1780.
- [7] Kim K Y, Yellampalle B, Rodriguez G, *et al.* Single-shot, interferometric, high-resolution, terahertz field diagnostic [J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 88(4): 041123.
- [8] Lin Q G, Pan X J, Zheng S Q, *et al.* Crossed and balanced single-shot electro-optic measurement for terahertz pulses [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2017, 44(1): 0114001.
林庆钢, 潘新建, 郑水钦, 等. 太赫兹脉冲的正交平衡单次光电测量[J]. *中国激光*, 2017, 44(1): 0114001.
- [9] Jamison S P, Shen J L, MacLeod A M, *et al.* High-temporal-resolution, single-shot characterization of terahertz pulses[J]. *Optics Letters*, 2003, 28(18): 1710-1712.
- [10] Schmidhammer U, de Waele V, Marquès J R, *et al.* Single shot linear detection of 0.01-10 THz electromagnetic fields[J]. *Applied Physics B*, 2009, 94(1): 95-101.
- [11] Kawada Y, Yasuda T, Takahashi H, *et al.* Real-time measurement of temporal waveforms of a terahertz pulse using a probe pulse with a tilted pulse front[J]. *Optics Letters*, 2008, 33(2): 180-182.
- [12] Kawada Y, Yasuda T, Nakanishi A, *et al.* Single-shot terahertz spectroscopy using pulse-front tilting of an ultra-short probe pulse[J]. *Optics Express*, 2011, 19(12): 11228-11235.
- [13] Zhai Z H, Zhong S C, Li J, *et al.* Time-resolved single-shot terahertz time-domain spectroscopy for ultrafast irreversible processes [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2016, 87(9): 095101.
- [14] Schall M, Helm H, Keiding S R. Far infrared properties of electro-optic crystals measured by THz time-domain spectroscopy [J]. *International Journal of Infrared and Millimeter Waves*, 1999, 20(4): 595-604.
- [15] Nakamura M, Higuchi S, Takekawa S, *et al.* Optical damage resistance and refractive indices in near-stoichiometric MgO-doped LiNbO_3 [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2002, 41(Part 2, No. 1A/B): L49-L51.