

连续波频域太赫兹光谱系统的研究

焦宇峰¹, 郭素杰¹, 孔德胤¹, 阮存军^{1,2*}¹北京航空航天大学电子信息工程学院, 北京 100191;²北京航空航天大学微波感知与安防北京市重点实验室, 北京 100191

摘要 基于相干探测的太赫兹频域光谱仪 (THz-FDS) 是国际上正在发展的一种高分辨率太赫兹光谱测量与分析系统。本团队搭建了连续波透射式 THz-FDS 和反射式 THz-FDS 系统, 并利用两种系统对固体、液体和气体样品进行测量, 介绍了测量数据的分析处理方法。采用透射式 THz-FDS 系统对比研究了极值法和希尔伯特变换法提取样品折射率的特性, 同时将希尔伯特变换法用于处理系统信号, 准确获取了乳糖-水合物的折射率, 并获得了极高的频率分辨率; 采用透射式 THz-FDS 系统结合传输矩阵法, 消除了测量液体样品过程中的 Fabry-Pérot 谐振, 成功获得了非极性有机液体样品正己烷和环己烷的折射率。在反射式 THz-FDS 系统的研究方面, 通过自参考方法准确获得了甲醇和乙醇在太赫兹频段的介电常数; 研究了单减 Kramers-Kronig (SSKK) 估计相位误差的方法, 成功提取了固体掺杂硅样品在太赫兹频段的折射率和吸收系数, 测量和计算数据与前人研究结果基本吻合。本研究为频域太赫兹光谱技术的发展与应用奠定了基础。

关键词 光谱学; 太赫兹频域光谱; 连续波; 透射式太赫兹频域光谱系统; 反射式太赫兹频域光谱系统; 介电常数; 折射率

中图分类号 O433

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL202249.1914002

1 引言

太赫兹的频率范围为 0.1~10.0 THz, 位于电磁波谱中毫米波到红外线之间, 正好处于宏观电子学向微观光子学过渡的频域区间。受太赫兹辐射产生与探测物理机理的限制, 该频段是国际上尚未充分研究开发但极具学术和应用价值的“频谱资源”。太赫兹具有频率高、频带宽、相干性好、穿透能力强、易于反隐身、光子能量低以及可建立物质的指纹谱等一系列优良特性, 这使得位于该频段的国防装备、电子系统和科研仪器在高速率数据传输、大容量通信、高分辨成像、高精度测控、隐藏物体探测、医学检测与诊断、材料结构分析生物谱和化学谱研究等方面具有非常广阔的发展前景。

与物质振动能级和转动能级跃迁对应的“指纹谱”, 是太赫兹光谱技术研究的内涵与关键, 在化学分析、分子光谱、固体物理学、生物学和医学、谱学成像等方面已被广泛应用^[1]。例如: 太赫兹光谱是气体分子分析最重要和最强大的工具之一, 通过比较太赫兹气相光谱的吸收特征, 可以确定样品的成分并可以监测环境中的气体浓度^[2-3]; 太赫兹光谱技术可对极性和非极性液体样品的折射率和吸收系数进行测量, 进而可

以表征极性和非极性液态混合物的浓度^[4]; 晶体^[5-6]、非晶体^[7]和高分子聚合物^[8]等固体样品的成分、结构、密度和晶体结构变化^[9]等都会对太赫兹光谱有一定的响应, 因此可将太赫兹光谱技术用于其微观能级与结构相互作用机理的研究。此外, 大部分生物分子或细胞在太赫兹频段的指纹谱具有唯一性, 因此, 太赫兹频谱技术非常适合用于对生物分子和药品进行检测与分析。如: 太赫兹波可用于研究生物大分子的振动跃迁, 能够在分子层面上提供生物信息^[10]; 通过观察生物大分子的光谱变化, 有望在更深层次上揭示生物细胞的病理和生理变化^[11]。除了可对上述物质的太赫兹谱进行测量研究外, 太赫兹光谱技术还被广泛应用于半导体载流子动力学^[12]、超材料^[13-15]和自旋电子学^[16-18]等领域。

当前, 太赫兹光谱技术是太赫兹科学技术的重要研究方向, 太赫兹光谱仪主要包括太赫兹时域光谱系统 (THz-TDS 系统) 和太赫兹频域光谱系统 (THz-FDS 系统) 两种类型。基于飞秒级超短激光脉冲激发和探测的 THz-TDS 系统因具有宽工作频率 (0.2~6.0 THz) 和高信噪比, 已被广泛应用于物质谱学特性研究中^[19]。THz-TDS 系统不仅可以利用飞秒激光产生太赫兹并进行探测, 还可以利用飞秒激光器激发物

收稿日期: 2022-06-13; 修回日期: 2022-07-07; 录用日期: 2022-07-11

基金项目: 国家自然科学基金(61222110, 61831001)

通信作者: *ruancunjun@buaa.edu.cn

质。同时,研究人员也可以基于该系统研究物质内部的瞬态超快现象。然而,THz-TDS 系统也有一些不足之处:1)分辨率受探测时间窗口的影响;2)系统中产生的振荡干扰使其频率分辨率仅限于 GHz;3)机械扫描速度较慢;4)测量的是时域信号,必须通过傅里叶变换才能获得物质在整个频段的光谱,不能任意选择某一范围的频率进行测量。这些不足之处在一定程度上限制了 THz-TDS 系统在光谱性能分析中的应用。

基于相干探测的连续波频域光谱仪是另外一种正在发展的太赫兹光谱系统。近年来,国际上开发出的连续波太赫兹相干谱仪已经成为高 Q 太赫兹器件研究的有力工具^[20]。THz-FDS 系统采用的是光学精确调频的频域测量方法,易于控制工作频率,并可通过选择测量频率范围来缩短测量时间和提高测量效率。通过相干检测方法,THz-FDS 系统不仅可以提取瞬时的振幅信息,还可以提取相位信息,从而获得目标样品的折射率和介电常数。此外,THz-FDS 系统通过改变光程差可使频率分辨率小于 300 MHz,进一步采用希尔伯特分析方法可使频率分辨率达到 4 MHz^[21]。这是目前广泛应用的 THz-TDS 系统所不能达到的频率分辨率水平。因此,THz-FDS 系统的超高分辨率使其在气体样品这种具有窄吸收峰物质的谱学研究方面具有显著优势^[22]。

综上,THz-FDS 系统可以弥补 THz-TDS 系统分辨率较低的不足,同时还具有频率易于控制、结构简单和成本低等优势。依据太赫兹光路结构,THz-FDS 系统可以分为反射式(测量反射谱)和透射式(测量透射谱)两种架构。透射式 THz-FDS 已被用于精确测量气体和固定样品的谱学特性,在谱学分辨率方面具有明显优势,并在提取乳糖-水合物的介电常数方面表现优异^[23]。很多待测物质是太赫兹波强吸收和高反射材料,反射式 THz-FDS 在这些材料的研究方面更具优势。目前,THz-FDS 系统在应用中仍存在问题,主要表现为:1)透射式 THz-FDS 系统的光路基本上为直线式方案,系统搭建比较简单,而反射式 THz-FDS 系统的搭建较为复杂,光路调整困难,且在替换样品过程中存在样品和参考反射面位置一致性控制和校正的难题。同时,反射式 THz-FDS 系统在实验中还存在如何选择参考,如何在所需测量条件下放置不同物态(固态、液态、气态)的样品,以及如何控制样品的测量状态等关键问题。2)THz-FDS 系统最终获得的结果的有效分辨率不仅与数据处理方法有关,还与系统结构参数有关,因此调整系统的频率分辨率还面临着一些物理和数据处理上的限制,这个问题的深入研究与分析对于系统的实际操作具有十分重要的指导作用。3)THz-FDS 系统目前还没有成熟和完整有效的数据处理方法,也缺少有关系统噪声和干扰的研究,谱仪系统测试最终获得的是一个余弦函数形式的信号,这与最终所要获得的物质的频谱结果(如透射谱、折

射率、介电常数等)还存在较大差距。上述这些问题是当前 THz-FDS 系统难以广泛和有效应用的主要原因。

为此,本团队以基于相干探测的连续波太赫兹频谱系统为研究重点,主要解决透射式和反射式 THz-FDS 系统搭建与性能优化、数据处理与物质电磁特性提取方法等方面的问题。此外,本团队还通过测量多种物质的太赫兹谱学,对所搭建的两种系统及其数据分析方法进行了实验验证。本研究工作为太赫兹频谱系统的开拓与应用奠定了基础,也为太赫兹频谱系统的改进与性能提升提供了借鉴。

2 连续波 THz-FDS 系统方案

如上所述,THz-FDS 系统的发展远不及 THz-TDS 系统成熟,仍在不断探索与研究中。本团队研制的基于拍频激光激发电导天线产生和探测太赫兹波的系统结构如图 1 所示,该系统主要由激光拍频耦合单元、太赫兹发射器和接收器、太赫兹光路、控制系统和计算机组成。THz-FDS 系统包括两种不同的连接光路,分别为激光光路和太赫兹光路,其中,激光光路有自由空间和光纤传输两种方式,而太赫兹光路主要为自由空间传输。光纤传输激光的方式可以提高系统的集成度,简化校准光路的过程,但是与自由空间传播相比可能会有更高的激光功率损耗。太赫兹光路可以分为透射式和反射式光路,分别用于测量物质的透射谱和反射谱。

在所搭建的 THz-FDS 实验系统中,太赫兹产生与测量部分为 TOPTICA Photonics 公司的 TeraScan 780 连续波太赫兹光谱仪,系统控制器为 DLC Smart (该设备不仅控制激光源,还提供偏置电压以及测量放大后的信号)。两台波长分别约为 783 nm 和 785 nm 的分布式反馈激光器(DFB 激光器)驱动并产生连续波激光输出,两台激光器都通过温度精确调节工作频率,从而达到精确控制太赫兹波频率的目的。两束激光通过光纤传输到激光耦合器中产生拍频信号,该拍频信号被分为两束平均功率为 36 mW 且相位近似的光束。利用两束拍频信号中的一束对低温生长的砷化镓(LT-GaAs)光电导天线进行激发,产生太赫兹波,太赫兹包络被交流电压调制。附加交流电压是为了方便之后对 nA 级电流进行锁相探测,而且约 40 kHz 的频率可以在某种程度上减小外在干扰^[24]。此外,还有一个放大器(PDA-S)负责将 nA 级光电流信号放大,之后光电流信号输入到 DLC Smart 控制器中进行信号处理,最终,数据传输到计算机中进行分析与利用。值得一提的是,THz-FDS 系统中连接发射器和接收器的两根光纤的长度不同,这会导致两个光电导天线接收到的拍频泵浦激光相位有时延,但是相位的差值在同一频率下是固定的,因此发射和接收到的太赫兹信号的相位是明确的。这也是 THz-FDS 系统相干探测的技术基础。

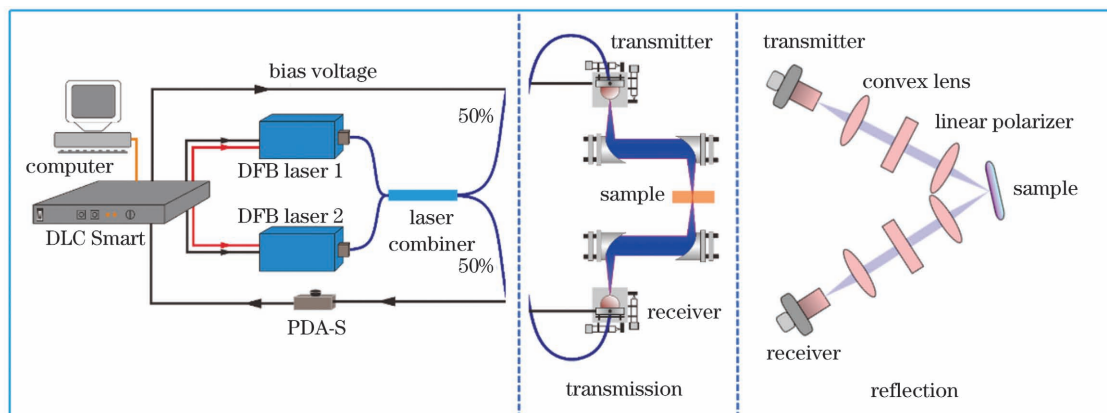


图 1 相干探测的 THz-FDS 系统结构图,分为透射式和反射式两种系统

Fig. 1 Schematic of coherent detection THz-FDS, including transmission and reflection systems

该 THz-FDS 系统发射的连续波太赫兹频谱覆盖范围为 0.05~2.00 THz。该系统产生的太赫兹波在不同频段的输出功率不同,测试结果显示:0.1 THz 时的最大平均功率约为 2 μW ,0.5 THz 时的最大平均功率降为 0.3 μW 。产生和探测太赫兹波的光电导天线采用宽频带的对数螺旋天线,其发射出的太赫兹波是圆偏振波。

从太赫兹光电导天线中发射出的太赫兹波是发散的,因此,通常使用透镜或者离轴抛物面镜来聚焦和准直太赫兹波。透镜是透射式结构,将其用于反射式太赫兹光谱系统中能够方便地调整光路,但透镜存在色散和吸收方面的问题。离轴抛物面镜是反射式结构,采用金属反射面,尽管会增加搭建和校准的难度,但它更适合对太赫兹波进行准直和聚焦。同时,离轴抛物面镜的反射性质几乎不随频率的变化而发生变化,适合宽频测量,可以将其用于透射式太赫兹光谱系统中。

3 透射式 THz-FDS 系统及实验研究

将 THz-FDS 用于研究待测物质的物理特性时,都会涉及复折射率的测量与分析。基于复折射率可以计算出待测物质在太赫兹频段的吸收系数、介电常数、介电损耗角正切和电导率等物理参数。一方面,这些物理参数表征了分子和原子的状态以及电子和空穴的分布、跃迁和跃迁概率,可以间接地用于研究材料的微观性质和机理;另一方面,由于大多数化学和生物分子的振动、转动以及分子间的弱相互作用(氢键、范德瓦耳斯力等)在太赫兹频段表现出不同的吸收和色散,所以可以利用这些参数检测物质结构和成分的微小变化^[25]。图 2 给出了使用透射式 THz-FDS 系统测量的水蒸气信号,这是典型的调幅调频的余弦信号,太赫兹波的幅度信息和相位信息都包含在其中。图 2 中特别给出了峰值和谷值区域(峰谷间频率差为 210 MHz),同时在图 2 中可以观察到水蒸气在 0.55 THz 附近和 0.75 THz 附近的吸收峰,高频部分也有较多的吸收峰。

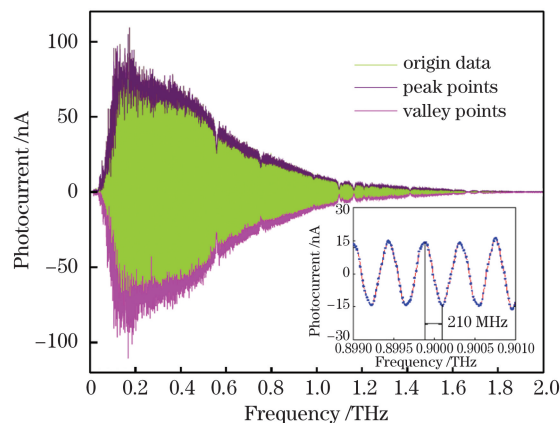


图 2 透射式 THz-FDS 系统测量的水蒸气原始信号,内嵌图是 0.8990~0.9010 THz 的放大波峰和波谷信号

Fig. 2 Original water vapor signal measured by transmission THz-FDS, where the inset shows enlarged peak and valley signals from 0.8990 to 0.9010 THz

3.1 透射式 THz-FDS 系统的结构和光路

图 3 给出了所搭建的透射式 THz-FDS 中的太赫兹光路方案。发射器中产生的太赫兹波被一个内嵌的焦距约为 30 mm 的超半球硅透镜聚焦后入射到 90°离轴抛物面镜 L1(外形尺寸约 2 inch, 1 inch=2.54 cm)中,变为准直光,接着通过第二个 90°离轴抛物面镜 L2(外形尺寸约 2 inch)并被聚焦。聚焦太赫兹波透过待测样品后发散,发散的传输信号通过对称的 2 个离轴抛物面镜系统 L3、L4 并分别被准直和聚焦,最后进入另一个与超半球硅透镜内嵌连接的接收器,进行信号的采集。所有用于太赫兹准直和聚焦的金属离轴抛物面镜的焦距均为 4 inch 左右。

3.2 数据处理方法

THz-FDS 系统的太赫兹探测器接收到的信号可以表示为

$$I_{\text{ph}} \propto E_{\text{THz}} \cos(\Delta\Phi) = E_{\text{THz}} \cos\left(\frac{2\pi\Delta L\nu}{c}\right), \quad (1)$$

式中: I_{ph} 表示光电流; E_{THz} 表示太赫兹场强; $\Delta\Phi$ 表示太赫兹信号的相位; ΔL 表示太赫兹信号发射器与接收器之间的光程; ν 表示太赫兹频率; c 表示真空中的

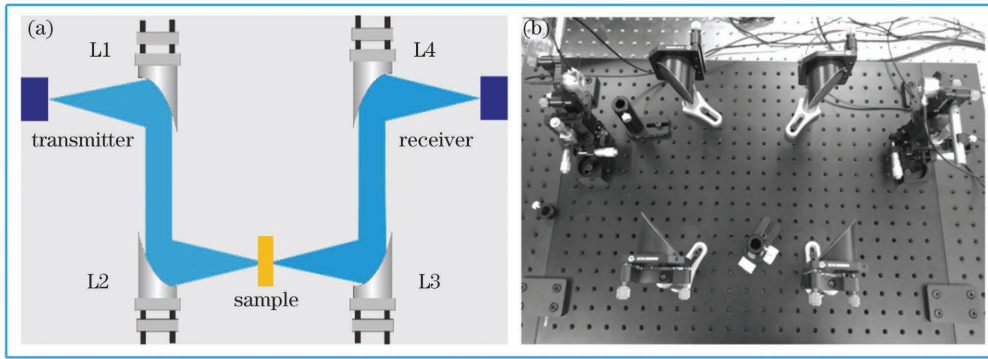


图 3 透射式 THz-FDS 系统。(a)光路;(b)实物图

Fig. 3 Transmission THz-FDS. (a) Optical path; (b) physical map

光速。为了研究物质在太赫兹频段的电磁特性,需要获得信号的幅度和相位。获取信号幅度和相位的常用方法有极值法^[24]和希尔伯特变换^[21]。

3.2.1 极值法

对于 THz-FDS 系统测量得到的余弦信号,有三种点的振幅或者相位可以直接被提取出来,即极大值点、极小值点和零点。如果使用光电流信号的零点确定相位,则理论上可以不使用信号的振幅信息来计算折射率,但是零点的振幅信息没有物理意义,因此使用极值点进行计算。信号在极大值点对应的频率可以通过相位计算出来,计算公式为

$$v_{\max,m}^{\text{ref}} = m \frac{c}{\Delta L_{\text{ref}}}, \quad m = 1, 2, 3, \dots, \quad (2)$$

式中: m 为信号最大值的阶数; $m = 1, 2, 3, \dots$; $v_{\max,m}^{\text{ref}}$ 表示参考信号在 m 阶的频率; ΔL_{ref} 表示测量的参考信号的光程差。与参考信号相比,折射率为 n 且厚度为 d 的样品使样品信号的光程差改变了 $(n - n_{\text{air}})d$, 因此参考信号的相位可以表示为

$$v_{\max,m}^{\text{sam}} = m \frac{c}{\Delta L_{\text{ref}} + (n - n_{\text{air}})d}. \quad (3)$$

假设 $n_{\text{air}} = 1$, 可得到待测样品折射率的计算公式为

$$(n - n_{\text{air}})d = \left(\frac{v_{\max,m}^{\text{ref}}}{v_{\max,m}^{\text{sam}}} - 1 \right) \Delta L_{\text{ref}}. \quad (4)$$

极值法只使用信号的部分采样点,这样会降低测

试结果的分辨率。若要提高光谱分辨率,就需要更大的数据点密度,但这会增加总的测量时间。除此之外,在计算样品的透射系数时需要用样品信号除以参考信号的包络来确定,但使用极值法获得的参考数据与样品数据在极值点处的频率不相互对应,因此需要将样品数据在参考数据极值的等距频率上进行插值。

3.2.2 希尔伯特变换

希尔伯特变换被广泛应用于调幅调频信号的解调,比如,在发言人识别(SID)技术中希尔伯特变换被用于提取声音的包络^[26]。希尔伯特变换得到的复数信号为

$$\tilde{I}_{\text{ph}} = I_{\text{ph}} + i\mathcal{H}(I_{\text{ph}}), \quad (5)$$

式中: \mathcal{H} 代表希尔伯特变换; \tilde{I}_{ph} 为复数光电流信号。利用式(5)可将复数信号的幅度和相位提取出来。通过希尔伯特变换可以将测量的所有数据点利用起来,极大地提高测量结果的分辨率,使系统的最高分辨率取决于系统的最小频率扫描步长。这种方法存在一定的边界效应,会影响低频与高频边界区域的数据。因此,在使用希尔伯特变换时,测量的频率范围要稍大于所需的范围^[21]。

本团队基于 THz-FDS 系统的测量数据,采用上述两种数据处理方法得到了乳糖-水合物的太赫兹透射谱^[23],如图 4 所示。可以发现,采用希尔伯特变换得到的包络具有最高的分辨率和准确度。

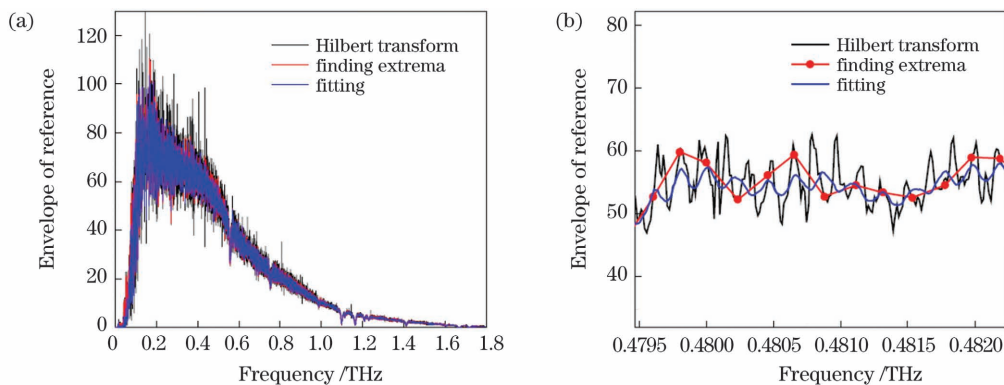


图 4 采用不同数据处理方法得到的乳糖-水合物的太赫兹透射谱。(a) 采用三种方法计算得到的参考包络;(b) 参考包络在 0.48 THz 附近的放大图

Fig. 4 THz transmission spectra of lactose monohydrate obtained with different data processing methods. (a) Envelope of reference calculated by three methods; (b) enlarged envelope of reference at about 0.48 THz

3.3 气体样品的透射式 THz-FDS 测量

气体分子的太赫兹谱学研究对于环境监测、气体检测等应用十分重要^[27]。通常,气体在太赫兹频段的吸收峰较狭窄。为了得到更准确的样品光谱信息,需要太赫兹系统的分辨率保持在 MHz 左右,因此,利用 THz-FDS 对气体样品进行检测具有独特优势。

大气环境是太赫兹技术不可避免的应用场景,大气中的水蒸气对太赫兹的吸收比较大,会在信号

中留下明显的吸收峰。为了研究大气环境,本团队在相对湿度为 7.5%、温度为 24.8 °C 的环境下,测量了频率范围在 0.05~2.00 THz 范围内的大气环境透射谱^[28],测量结果如图 5 所示。在图 5(a)中可以清晰地观察到水蒸气在 0.558、0.753、0.989 THz 附近的共计 16 个吸收峰。为了更清楚地观察水蒸气的谱峰,图 5(b)~(d)给出了三个不同频段的太赫兹吸收谱图。

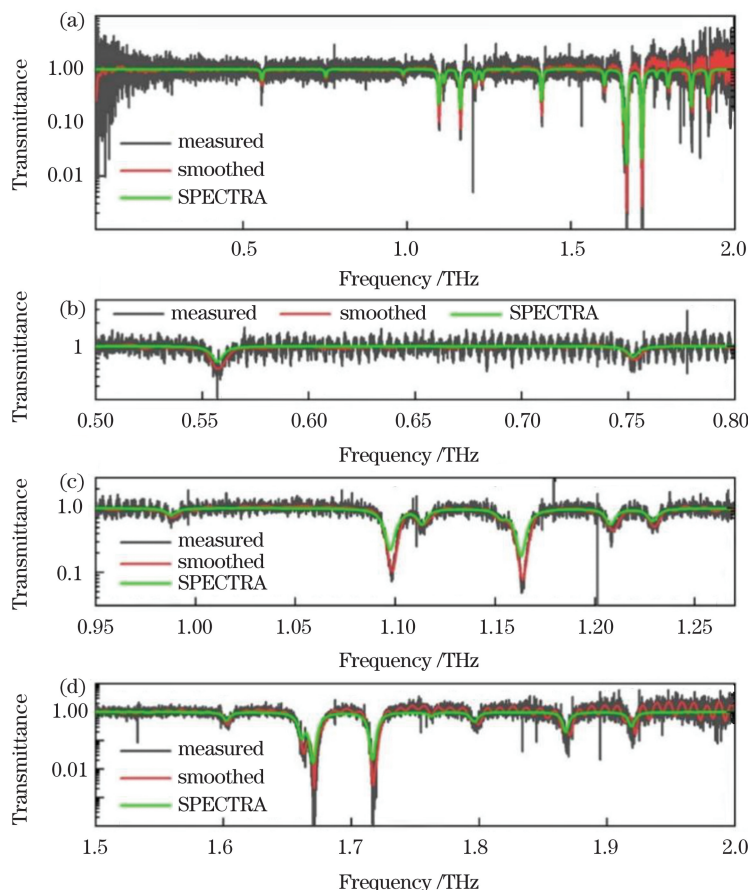


图 5 大气环境透射谱(相对湿度为 7.5%,温度为 24.8 °C)。(a) 0.05~2.00 THz 的透射谱;(b)~(d)三个不同频段的透射谱
Fig. 5 Atmospheric transmission spectra (relative humidity is 7.5% and temperature is 24.8 °C). (a) Transmission spectra from 0.05 to 2.00 THz; (b)–(d) transmission spectra in three different frequency bands

此外,本团队测量了不同相对湿度下的大气透射谱。图 6 给出了 0.558、0.753、0.989 THz 频点下太赫兹波透射率随相对湿度的变化曲线。结果显示,随着相对湿度增大,各频点下的太赫兹波透射率呈现明显的下降趋势,即水蒸气对太赫兹波的吸收逐渐增强。

3.4 固体样品的透射式 THz-FDS 测量

在对固体样品数据进行分析时,基于空气的参考信号即可将天线发射的相位、天线频率响应和外加偏压等干扰去除,进而获得待测样品的透射系数和相位信息。通过相位信息可以计算得到样品的折射率,计算公式为

$$n_{\text{sam}} = -\frac{\Delta\Phi'c}{wd} + n_{\text{ref}}, \quad (6)$$

式中: n_{ref} 为空气的理论折射率, $n_{\text{ref}}=1$; $\Delta\Phi'$ 为参考信

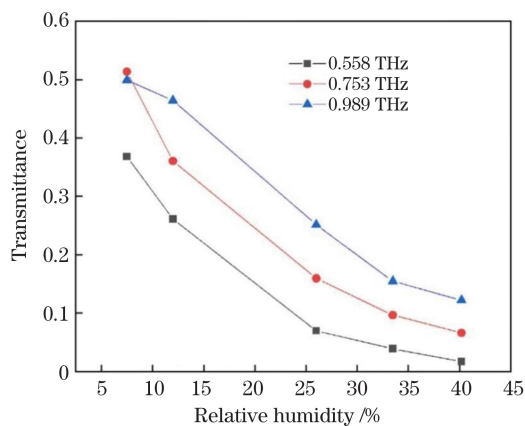


图 6 不同频点下太赫兹波透射率随相对湿度的变化
Fig. 6 Variation of THz wave transmittance with relative humidity at different frequency values

号和样品的相位差, $\Delta\Phi' = \Delta\Phi_{\text{sam}} - \Delta\Phi_{\text{ref}}$; d 表示固体样品的厚度; c 表示真空中的光速; ω 为太赫兹角频率。根据计算得到的透射系数和折射率, 可以通过式(7)和式(8)计算得到固体样品的消光系数, 进而计算得到固体样品的介电常数。

$$t^2 = \frac{(1 - R)^2 \exp(-\alpha_p d)}{[1 - R \exp(-\alpha_p d)]^2 + 4R \exp(-\alpha_p d) \sin^2(n\omega d/c)}, \quad (7)$$

其中,

$$R = \frac{(n - 1)^2 + \kappa^2}{(n + 1)^2 + \kappa^2}, \quad (8)$$

式中: α_p 为吸收系数; κ 为消光系数; t 为透射系数。此公式仅仅适用于 $n \ll \kappa$ 的情况, 即仅适用低吸收样品。在式(7)中, 输入的数据为获得的透射系数和折射率, 待计算的量为消光系数。求解这个只有一个未知量的方程是比较方便的, 而且也不容易出现多值问题。

为了测试系统对固体样品的测试能力, 将在太赫兹频段具有独特吸收峰的乳糖一水合物(C12H22O11)

粉末样品作为待测物。使用压片机以约 26 MPa 的压力将粉末压片获得待测样品, 压制时间为 1 min, 样品厚度约为 0.522 mm, 直径约为 20 mm。粉末购自上海阿拉丁生化科技股份有限公司。

图 7 给出了采用不同数据分析方法计算得到的乳糖一水合物固体样品的透射系数、折射率以及介电常数的实部和虚部^[23]。分析后可知: 利用希尔伯特变换法计算得到的乳糖一水合物固体样品相关数据的频率分辨率高达 14 MHz; TDS 测量结果的频率分辨率远小于 FDS 的测试结果。此外, 使用局部加权散点图平滑方法(LOWESS)对极值法^[24]和拟合法的结果进行了光谱平滑处理。为了区分三种数据分析方法的结果, 对极值法和拟合法的结果进行了偏移。

图 7(a)、(b)分别是样品的透射系数和折射率, 平均透射系数约为 0.95, 平均折射率约为 1.7。计算出的介电常数的实部和虚部如图 7(c)、(d)所示, 介电常数实部的平均值约为 3.2, 而虚部的平均值几乎为 0。三种方法都准确地展现出了乳糖一水合物在 0.53、1.20、1.37 THz 三个频率附近的吸收峰, 这之前报道的结果^[24]非常吻合。

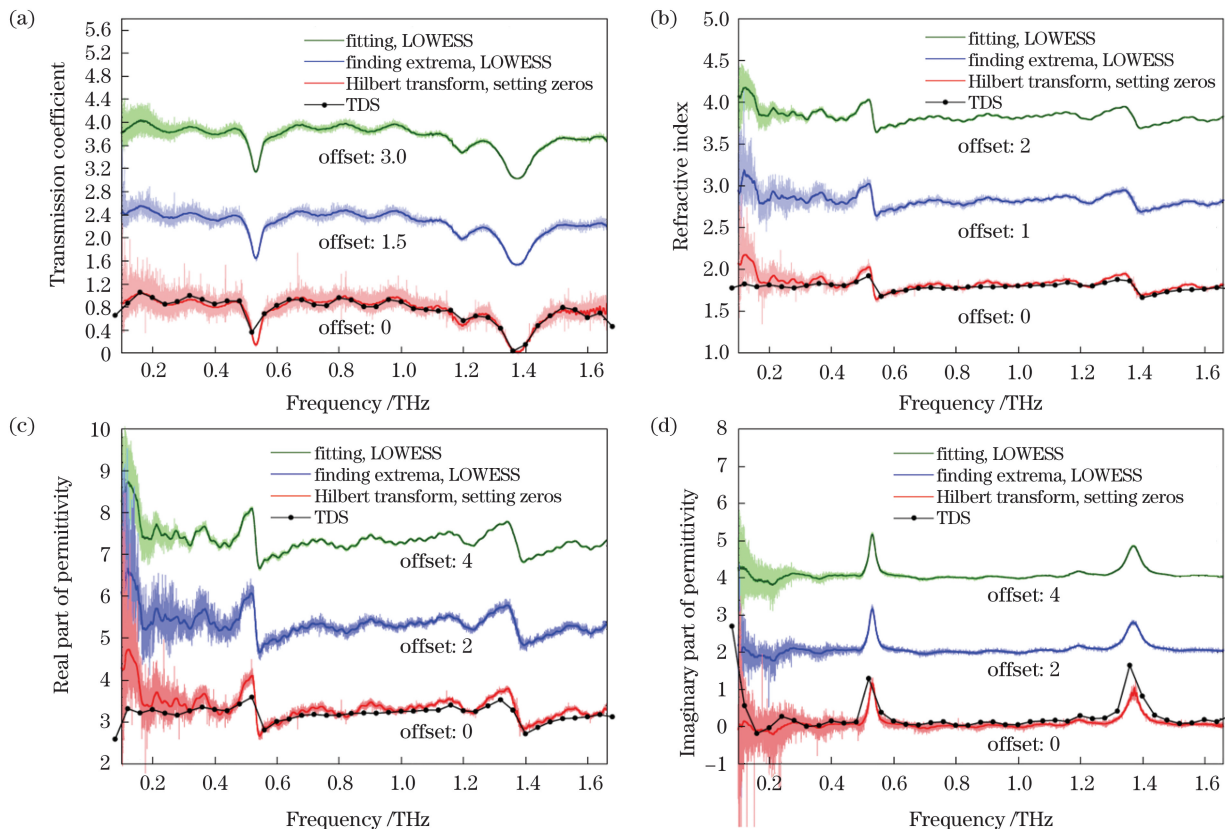


图 7 采用不同数据分析方法计算出的乳糖一水合物的透射系数、折射率以及介电常数的实部和虚部。(a)透射系数;(b)折射率;(c)介电常数的实部;(d)介电常数的虚部

Fig. 7 Calculated transmission coefficient, refractive index, real part and imaginary part of permittivity of lactose monohydrate with different data analysis methods. (a) Transmission coefficient; (b) refractive index; (c) real part of permittivity; (d) imaginary part of permittivity

3.5 液体样品的透射式 THz-FDS 测量

根据液体分子化学键的极性性质, 液体一般可以

分为极性液体和非极性液体。非极性液体分子的瞬时偶极矩对太赫兹波的吸收相对较小, 极性液体分子的

永久偶极矩对太赫兹波的吸收较大。

图 8 给出了本团队设计和制作的待测液体容器(样品池)照片及其结构示意图,样品池材料为高密度聚乙烯(HDPE)。在液体测量过程中,太赫兹信号会

在液体样品和样品池壁之间发生多次反射和透射,从而产生 Fabry-Pérot 谐振,采用时域滤波方法无法在时域中区分出主信号和振荡信号。本文使用传输矩阵方法来消除此振荡。

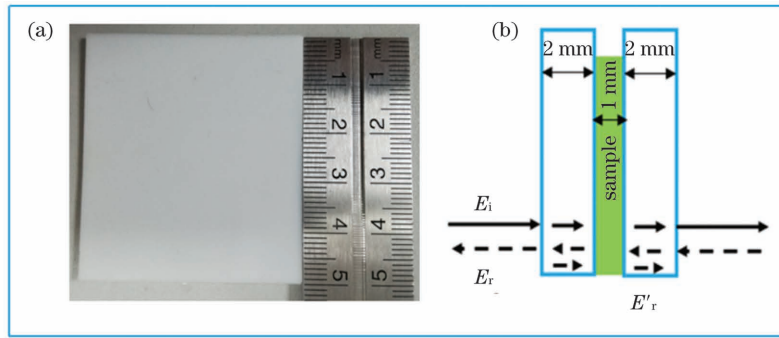


图 8 样品池照片及结构示意图。(a)照片;(b)结构示意图

Fig. 8 Picture and structure schematic of sample container. (a) Picture; (b) structure schematic

单层传输矩阵方程可以表示为

$$\mathbf{M}_j = \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \delta_j & \frac{i}{n_j} \sin \delta_j \\ i n_j \sin \delta_j & \cos \delta_j \end{pmatrix}, \quad (9)$$

其中,

$$\delta_j = \frac{2\pi f}{c} n_j d_j \cos \theta_j. \quad (10)$$

式中: \mathbf{M}_j 表示单层特征矩阵; n_j 和 d_j 分别为各层的折射率和厚度; θ_j 为入射角; f 为频率。多层结构模型对应的多层转移矩阵可以通过单层特征方程逐层相乘得到,即

$$\mathbf{M} = \mathbf{M}_1 \mathbf{M}_2 \mathbf{M}_3 = \prod_{j=1}^N \mathbf{M}_j = \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{pmatrix}. \quad (11)$$

通过式(11)可以计算得到样品的透射系数为

$$t = \frac{2p_j}{(m_{11} + m_{12} p_{j+1}) p_j + (m_{21} + m_{22} p_{j+1})}, \quad (12)$$

式中: $p_j = n_j \cos \theta_j$ 。

在多层结构中,液体腔的折射率和厚度需要首先被测出来,然后再通过式(12)计算得到样品的透射系数。同时,透射系数可以由样品信号与参考信号的幅度比值得到,从而可以反推出样品材料的折射率。

基于上述方法,本团队使用透射式 THz-FDS 对非极性有机液体(环己烷和正己烷)的折射率进行了测量^[29],测量结果如图 9 所示,与前人的测试结果^[30-31]基本一致。

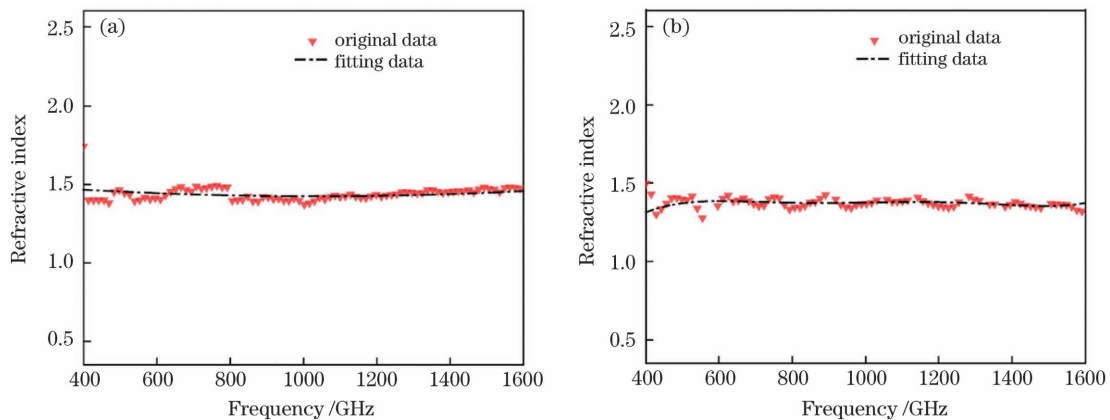


图 9 环己烷和正己烷折射率的测量结果。(a)环己烷;(b)正己烷

Fig. 9 Measured refractive index of cyclohexane and n-hexane. (a) Cyclohexane; (b) n-hexane

4 反射式 THz-FDS 系统及实验研究

对于在太赫兹频段吸收性很强的极性液体以及反射率较高的导体、半导体,通常无法使用透射式系统进行准确的光谱检测。因此,反射式 THz-FDS 系统在固体和液体的检测上具有广阔的应用前景。在反射式 THz-FDS 中,可以将测量固体时的反射器(例如金属

镜)替换为样品来记录参考信号。这种方法对参考镜相对于样品表面的精确位置非常敏感,并且需要在计算分析中进行一些补偿^[32]。

理论推导和实践均已证明,THz 脉冲入射角 θ 通过 $1/\cos(2\theta)$ 影响测得的折射系数。折射系数较大时测量误差会更大^[22],使用较小的 THz 脉冲入射角能够获得更好的测试结果。

4.1 反射式 THz-FDS 系统的结构和光路

图 10 给出了搭建的反射式 THz-FDS 系统的光路及照片。太赫兹波由发射器发出,通过一个焦距为 50 mm 的凸透镜 L1 进行准直,然后通过一个线栅偏

振器 L2 产生垂直极化波或者平行极化波,再通过一个焦距为 100 mm 的凸透镜 L3 进行聚焦,聚焦的太赫兹波被样品或反射镜反射,接着通过对称的光学系统 L4、L5 和 L6 被接收器采集。

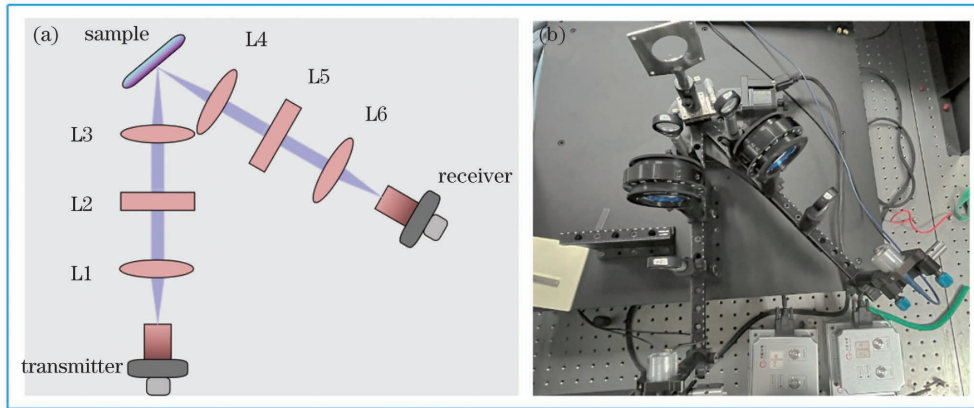


图 10 反射式 THz-FDS 系统的光路及照片。(a) 光路;(b) 照片
Fig. 10 Optical path and photo of reflection THz-FDS. (a) Optical path; (b) photo

4.2 液体样品的反射式 THz-FDS 测量

可以使用自参考的方法对于液体样品进行反射式 THz-FDS 测量。窗口材料使用的是在太赫兹频段内色散和吸收基本为零的高阻硅,其恒定折射率为 3.425^[5]。高折射率材料是比较理想的,可以很好地平衡参考反射信号和样本反射信号的强度。图 11 所示为自参考反射的理论模型。 E_{ref} 是来自硅窗和空气界面的反射信号, E_{sam1} 是硅窗和液体界面的反射信号, E_{sam2} 是液体和样品容器界面的反射信号。只需要知道 E_{ref} 和 E_{sam1} 即可提取得到液体样品的介电常数。

Jepsen 等^[33] 搭建了工作在任意角度和任意极化波下的反射式 TDS 系统结构,给出了使用空气参考信号进行校准的自参考方法,并推导出了相应的计算公式和对应的三层介质的菲涅耳系数,最后利用菲涅耳系数和测量得到的反射系数推导出了样品的折射率和介电常数。这里,本文补充给出了计算 p 极化波折射率的计算公式:

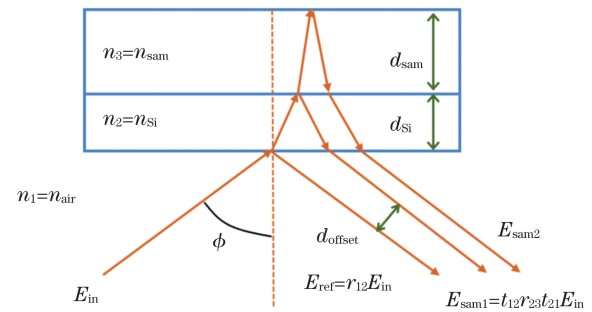


图 11 自参考反射结构示意图
Fig. 11 Schematic of self-referenced reflection structure

其中,

$$\begin{cases} M = (1 - \hat{r}_{23, sam}^{\parallel})^2 (n_2^2 - \sin^2 \varphi) \\ N = (1 + \hat{r}_{23, sam}^{\parallel})^2 n_2^4 \end{cases}, \quad (14)$$

式中: φ' 表示 p 极化波的入射角; $\hat{r}_{23, sam}^{\parallel}$ 表示 p 极化波的反射系数; n_2 表示高阻硅的折射率。

图 12 给出了在入射角为 20° 以及 s 极化波条件下使用自参考校准模型和小波变换抑噪^[34] 的反射式 THz-FDS 测量结果,其中实线为甲醇和乙醇介电常数

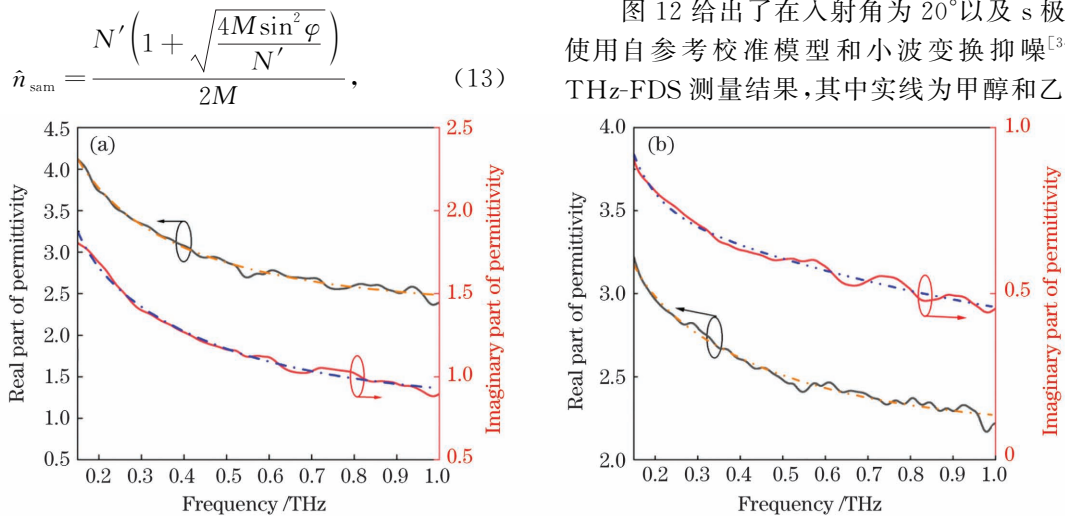


图 12 测量得到的甲醇和乙醇的介电常数,实线是测量结果,虚线是德拜拟合结果。(a) 甲醇;(b) 乙醇
Fig. 12 Measured permittivity of methanol and ethanol, where solid and dotted lines are measurement and Debye fitting results, respectively. (a) Methanol; (b) ethanol

的测量结果,虚线为三重德拜拟合结果。结果显示,本文得到的测量数据与前人的测试结果^[35]比较吻合。

4.3 固体样品的反射式 THz-FDS 测量

目前,利用反射式 THz-FDS 系统对固体进行测量的研究工作较少,因为测量固体时需要使用反射镜替换样品来获得参考信号,这样做会产生固有相位偏移,需要进行补偿^[36]。Peiponen 等^[37]采用改进的单减 Kramers-Kronig (SSKK)方法来消除测量的未掺杂 InAs 光谱中的相位误差,Vartiainen 等^[38]采用最大熵方法(MEM)解决了相同的问题。

本团队利用搭建的反射式 THz-FDS 系统,对电阻率约为 $0.3 \Omega \cdot \text{cm}$ 、晶向为(100)的掺杂硅进行了测试,并使用 SSKK 方法对测量过程中产生的固有相位偏移进行了校正。校正原理是对测试得到的反射谱 $r(\omega)$ 进行相位补偿,得到理论反射谱为 $r_{\text{exp}}(\omega) = r(\omega) \exp(i\beta\omega)$, 然后将其代入式(15)中计算不同补偿相位下的幅度差值。

$$A(\beta) = \int_{\omega_a}^{\omega_b} |f_{\beta}(\omega) - f_{\beta}^{\text{SSKK}}(\omega)|^2 d\omega, \quad (15)$$

式中: β 为误差相位; ω 为角频率; $f_{\beta}(\omega)$ 为反射谱; $f_{\beta}^{\text{SSKK}}(\omega)$ 为通过 SSKK 修正的反射谱。

在信号处理中,为了消除带限信号的边缘突变和奇点,通常将反射谱 $f_{\beta}(\omega)$ 修正为

$$f_{\beta}(\omega) = [p(\omega) - p(\omega_a)][p(\omega) - p^*(\omega_a)] [p(\omega) - p(\omega_b)][p(\omega) - p^*(\omega_b)], \quad (16)$$

式中: $p(\omega) = \lg r(\omega)$ 。 $f_{\beta}^{\text{SSKK}}(\omega)$ 的计算公式为

$$\text{Re}\{f(\omega')\} \approx \text{Re}\{f(\omega_1)\} + (\omega'^2 - \omega_1^2) \frac{2}{\pi} \cdot$$

$$P \int_{\omega_a}^{\omega_b} \omega \frac{\text{Im}\{f(\omega)\}}{(\omega^2 - \omega'^2)(\omega^2 - \omega_1^2)} d\omega, \quad (17)$$

$$\frac{\text{Im}\{f(\omega')\}}{\omega'} \approx \frac{\text{Im}\{f(\omega_1)\}}{\omega_1} + (\omega'^2 - \omega_1^2) \frac{2}{\pi} \cdot P \int_{\omega_a}^{\omega_b} \omega \frac{\text{Re}\{f(\omega)\}}{(\omega^2 - \omega'^2)(\omega^2 - \omega_1^2)} d\omega, \quad (18)$$

式中: ω' 为太赫兹角频率; ω_1 为锚定点频率; P 为柯西主值积分。

图 13 给出了使用 SSKK 方法计算得到的相位修正图。可见,在 -0.27 ps 附近, $A(\beta)$ 达到最小值。即,可以使用该时间来弥补反射谱的相位,从而计算相应的物理参数。

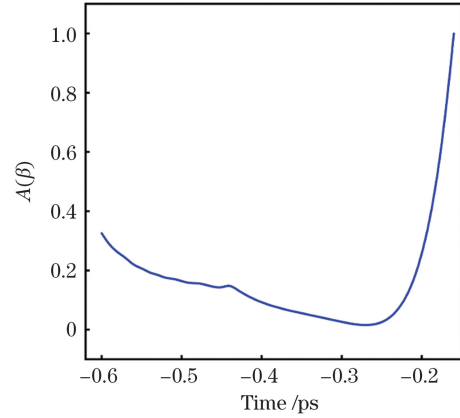


图 13 SSKK 计算得到的归一化 $A(\beta)$

Fig. 13 Normalized $A(\beta)$ calculated by SSKK

图 14 给出了使用 SSKK 方法校正错位误差后的数据处理结果。图 14(a)、(b)分别给出了电阻率约为 $0.3 \Omega \cdot \text{cm}$ 、晶向为(100)的掺杂硅的折射率和吸收系数,其中折射率呈现出在 0.5 THz 之前下降而后上升的趋势,吸收系数呈现出在 0.75 THz 之前上升而后下降的趋势。该测试结果与文献[39]的测试结果基本吻合。

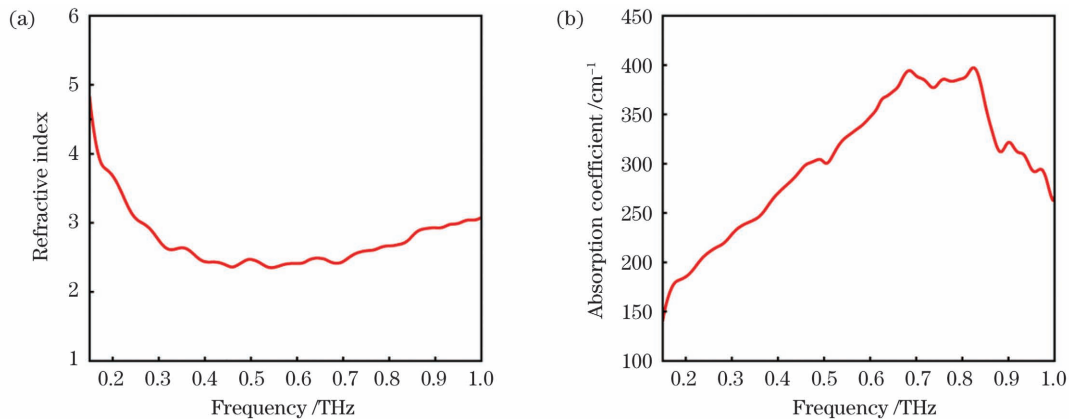


图 14 测量得到的掺杂硅的折射率和吸收常数。(a) 折射率;(b)吸收系数

Fig. 14 Measured refractive index and absorption coefficient of doped silicon. (a) Refractive index; (b) absorption coefficient

5 结 论

太赫兹光谱系统作为太赫兹科学领域的重点研究方向,主要发展出了 THz-TDS 和 THz-FDS 两种光谱系统。其中的 THz-FDS 具有高频率分辨率、结构简

单和频率可调谐等优势,弥补了 THz-TDS 系统的一些缺陷。本文详细论述了透射式 THz-FDS 系统和反射式 THz-FDS 系统的结构及数据处理原理,并使用本团队搭建的连续波透射式 THz-FDS 系统研究了大气中水蒸气样品的高分辨率太赫兹光谱数据;详细对

比了极值法和希尔伯特变换法获得的乳糖-水合物的透射系数和折射率,获得了高达 14 MHz 的频率分辨率;使用传输矩阵消除了透射方法测量液体样品过程中的 Fabry-Pérot 谐振,准确获取了非极性有机液体正己烷和环己烷在太赫兹频段的折射率。在连续波反射式 THz-FDS 研究方面,本团队使用自参考校正和小波变换抑噪准确获得了甲醇和乙醇在太赫兹频段的介电常数,并采用 SSKK 方法成功提取得到了固态掺杂硅的折射率和吸收系数。上述研究结果全面验证了本团队搭建的连续波 THz-FDS 系统及其数据处理方法的有效性,为频域太赫兹光谱技术的发展与应用奠定了基础。

参 考 文 献

- [1] Baxter J B, Guglietta G W. Terahertz spectroscopy [J]. *Analytical Chemistry*, 2011, 83(12): 4342-4368.
- [2] Jacobsen R H, Mittleman D M, Nuss M C. Chemical recognition of gases and gas mixtures with terahertz waves[J]. *Optics Letters*, 1996, 21(24): 2011-2013.
- [3] Sang B H, Jeon T I. Pressure-dependent refractive indices of gases by THz time-domain spectroscopy [J]. *Optics Express*, 2016, 24(25): 29040-29047.
- [4] Arik E, Altan H, Esenturk O. Dielectric properties of ethanol and gasoline mixtures by terahertz spectroscopy and an effective method for determination of ethanol content of gasoline[J]. *The Journal of Physical Chemistry A*, 2014, 118(17): 3081-3089.
- [5] Dai J M, Zhang J Q, Zhang W L, et al. Terahertz time-domain spectroscopy characterization of the far-infrared absorption and index of refraction of high-resistivity, float-zone silicon [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2004, 21(7): 1379-1386.
- [6] 燕芳, 刘同华, 张俊林. 糖类同分异构体的太赫兹吸收峰形成机理研究[J]. *光学学报*, 2022, 42(5): 0530001.
Yan F, Liu T H, Zhang J L. Formation mechanism of terahertz absorption peaks of carbohydrate isomers [J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(5): 0530001.
- [7] Naftaly M, Miles R E. Terahertz time-domain spectroscopy for material characterization [J]. *Proceedings of the IEEE*, 2007, 95(8): 1658-1665.
- [8] D'Angelo F, Mics Z, Bonn M, et al. Ultra-broadband THz time-domain spectroscopy of common polymers using THz air photonics [J]. *Optics Express*, 2014, 22(10): 12475-12485.
- [9] Mehboob S, Mehmood M, Ahmed M, et al. Terahertz time domain spectroscopy of amorphous and crystalline aluminum oxide nanostructures synthesized by thermal decomposition of AACH [J]. *Materials Chemistry and Physics*, 2017, 191: 62-69.
- [10] 王馨达, 宋正勋, 李岩, 等. 基于太赫兹光谱的 DNA 检测及应用综述 [J]. *激光与光电子学进展*, 2020, 57(17): 170003.
Wang X D, Song Z X, Li Y, et al. Review of DNA detection and application based on THz spectroscopy [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2020, 57(17): 170003.
- [11] 朱亦鸣, 施辰君, 吴旭, 等. 生物医学检测中太赫兹光谱技术的算法研究 [J]. *光学学报*, 2021, 41(1): 0130001.
Zhu Y M, Shi C J, Wu X, et al. Terahertz spectroscopy algorithms for biomedical detection [J]. *Acta Optica Sinica*, 2021, 41(1): 0130001.
- [12] Ulbricht R, Hendry E, Shan J, et al. Carrier dynamics in semiconductors studied with time-resolved terahertz spectroscopy [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2011, 83(2): 543-586.
- [13] Gu J Q, Singh R, Liu X J, et al. Active control of electromagnetically induced transparency analogue in terahertz metamaterials [J]. *Nature Communications*, 2012, 3: 1151.
- [14] Kan T, Isozaki A, Kanda N, et al. Enantiomeric switching of chiral metamaterial for terahertz polarization modulation employing vertically deformable MEMS spirals [J]. *Nature Communications*, 2015, 6: 8422.
- [15] Hao J M, Yuan Y, Ran L X, et al. Manipulating electromagnetic wave polarizations by anisotropic metamaterials [J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99(6): 063908.
- [16] Kampfrath T, Sell A, Klatt G, et al. Coherent terahertz control of antiferromagnetic spin waves [J]. *Nature Photonics*, 2011, 5(1): 31-34.
- [17] Torosyan G, Keller S, Scheuer L, et al. Optimized spintronic terahertz emitters based on epitaxial grown Fe/Pt layer structures [J]. *Scientific Reports*, 2018, 8: 1311.
- [18] Qiu H S, Kato K, Hirota K, et al. Layer thickness dependence of the terahertz emission based on spin current in ferromagnetic heterostructures [J]. *Optics Express*, 2018, 26(12): 15247-15254.
- [19] Liu H S, Zhang Z W, Yang Y P, et al. Identification terahertz spectra for the dyestuffs based on principal component analysis and Savitzky-Golay filter [J]. *Optik*, 2018, 172: 668-673.
- [20] Heyden M, Bründermann E, Heugen U, et al. Long-range influence of carbohydrates on the solvation dynamics of water: answers from terahertz absorption measurements and molecular modeling simulations [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2008, 130(17): 5773-5779.
- [21] Vogt D W, Leonhardt R. High resolution terahertz spectroscopy of a whispering gallery mode bubble resonator using Hilbert analysis [J]. *Optics Express*, 2017, 25(14): 16860-16866.
- [22] 曹灿, 张朝晖, 赵小燕, 等. 太赫兹时域光谱与频域光谱研究综述 [J]. *光谱学与光谱分析*, 2018, 38(9): 2688-2699.
Cao C, Zhang Z H, Zhao X Y, et al. Review of terahertz time domain and frequency-domain spectroscopy [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2018, 38(9): 2688-2699.
- [23] Kong D Y, Wu X J, Wang B, et al. High resolution continuous wave terahertz spectroscopy on solid-state samples with coherent detection [J]. *Optics Express*, 2018, 26(14): 17964-17976.
- [24] Roggenbuck A, Schmitz H, Deninger A, et al. Coherent broadband continuous-wave terahertz spectroscopy on solid-state samples [J]. *New Journal of Physics*, 2010, 12(4): 043017.
- [25] Han B J, Han Z H, Qin J Y, et al. A sensitive and selective terahertz sensor for the fingerprint detection of lactose [J]. *Talanta*, 2019, 192: 1-5.
- [26] Falk T H, Chan W Y. Modulation spectral features for robust far-field speaker identification [J]. *IEEE Transactions on Audio, Speech, and Language Processing*, 2010, 18(1): 90-100.
- [27] Neumaier P F X, Schmalz K, Borngräber J, et al. Terahertz gas-phase spectroscopy: chemometrics for security and medical applications [J]. *Analyst*, 2015, 140(1): 213-222.
- [28] Ruan C J, Kong D Y, Dai J, et al. High-resolution frequency-domain spectroscopy for water vapor with coherent and continuous terahertz wave [J]. *Chinese Optics Letters*, 2019, 17(7): 073001.
- [29] Ruan C J, Guo S J, Kong D Y, et al. Research on terahertz transmission characteristics of non-polar liquid based on frequency-domain spectroscopy [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2020, 37(7): 1942-1947.
- [30] Pedersen J E, Keiding S R. THz time-domain spectroscopy of nonpolar liquids [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1992, 28(10): 2518-2522.
- [31] Laib J P, Mittleman D M. Temperature-dependent terahertz spectroscopy of liquid n-alkanes [J]. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 2010, 31(9): 1015-1021.
- [32] Bernier M, Garet F, Coutaz J L. Precise determination of the refractive index of samples showing low transmission bands by THz time-domain spectroscopy [J]. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 2013, 3(3): 295-301.

- [33] Jepsen P U, Møller U, Merbold H. Investigation of aqueous alcohol and sugar solutions with reflection terahertz time-domain spectroscopy[J]. *Optics Express*, 2007, 15(22): 14717-14737.
- [34] Chen Y, Huang S Y, Pickwell-Macpherson E. Frequency-wavelet domain deconvolution for terahertz reflection imaging and spectroscopy[J]. *Optics Express*, 2010, 18(2): 1177-1190.
- [35] Swithenbank M, Burnett A D, Russell C, et al. On-chip terahertz-frequency measurements of liquids [J]. *Analytical Chemistry*, 2017, 89(15): 7981-7987.
- [36] Bernier M, Garet F, Kato E, et al. Comparative study of material parameter extraction using terahertz time-domain spectroscopy in transmission and in reflection [J]. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 2018, 39(4): 349-366.
- [37] Peiponen K E, Saarinen J J. Generalized Kramers-Kronig relations in nonlinear optical- and THz-spectroscopy[J]. *Reports on Progress in Physics*, 2009, 72(5): 056401.
- [38] Vartiainen E M, Peiponen K E. Optical and terahertz spectra analysis by the maximum entropy method [J]. *Reports on Progress in Physics*, 2013, 76(6): 066401.
- [39] Jeon T I, Grischkowsky D. Characterization of optically dense, doped semiconductors by reflection THz time domain spectroscopy[J]. *Applied Physics Letters*, 1998, 72(23): 3032-3034.

Continuous-Wave Frequency-Domain Terahertz Spectroscopy System

Jiao Yufeng¹, Guo Sujie¹, Kong Deyin¹, Ruan Cunjun^{1,2*}

¹ School of Electronic and Information Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China;

² Beijing Key Laboratory for Microwave Sensing and Security Applications, Beihang University, Beijing 100191, China

Abstract

Objective Terahertz spectroscopy, which mainly includes terahertz time-domain spectroscopy (THz-TDS) and terahertz frequency-domain spectroscopy (THz-FDS), is an important research field of terahertz science and technology. THz-TDS based on the excitation and detection of femtosecond ultrashort laser pulses has been widely used in the study of spectroscopic properties of substances owing to its wide range of operating frequency (0.2–6.0 THz) and high signal-to-noise ratio. However, the resolution of THz-TDS is affected by its detection time window. The oscillatory disturbances generated in the system limit its frequency resolution to GHz, and the mechanical scanning speed is slow. In addition, THz-TDS obtains time-domain signals, and the spectrum of the entire frequency band of the substance must be achieved through a Fourier transform; moreover, it cannot arbitrarily select a certain range of frequencies for measurement. These factors have limited the spectral analysis performance and application of THz-TDS to some extent. Continuous-wave THz-FDS based on coherent detection is another developing terahertz spectroscopy technology with the advantages of high frequency resolution, simple structure, and tunability of the output frequency. Therefore, THz-FDS has gradually become a powerful tool for research on high-Q terahertz devices. With respect to system structure, the THz-FDS system can be divided into reflection type (measuring the reflection spectrum) and transmission type (measuring the transmission spectrum) schemes. In this paper, we mainly solve the construction and performance optimization of transmission and reflection THz-FDS systems and systematically study the data processing methods to extract material electromagnetic parameters.

Methods There are different data processing methods for both transmission and reflection THz-FDS structures. For different sample states, such as gas, liquid, and solid, we designed appropriate bearing structures and data processing methods. For the transmission THz-FDS, we compared the three methods of fitting, finding extrema, and the Hilbert transform to extract the electromagnetic parameters of samples. Finally, we selected the Hilbert transform method combined with time-domain zeroing to eliminate the Fabry-Pérot (FP) effect, and the frequency-domain resolution was approximately 14 MHz. In addition, solid samples should be sufficiently thin to avoid FP effect, and gas samples should be sealed in a container to prevent leakage. The measurement of liquid samples was more complicated because the multiple reflections and transmissions between the container cell and the liquid caused the FP effect; we used the transmission matrix method to eliminate this effect. For the reflection THz-FDS, we designed a liquid container using high-resistivity silicon and measured liquids using a self-referenced calibration method to avoid beam offset. Furthermore, we used the singly subtractive Kramers-Kronig (SSKK) method to correct for phase errors that arose during solid sample replacement.

Results and Discussions In the study of transmission THz-FDS, we measure the transmission spectrum of the atmospheric environment in the frequency range of 0.05–2.00 THz under the condition of relative humidity of 7.5% and temperature of 24.8 °C. Approximately 16 water vapor absorption peaks can be clearly observed (Fig. 5). In addition, we demonstrate the relationship between different water vapor concentrations and terahertz absorption intensity at three frequency points of 0.558 THz, 0.753 THz, and 0.989 THz. The results show that with an increase in the water vapor concentration, the terahertz transmittance of each frequency point presents an apparent downward trend, that is, the

absorption of water vapor to the terahertz wave gradually increases (Fig. 6). We then determine the refractive index and permittivity of lactose monohydrate via the Hilbert transform, finding extrema, and fitting methods. The average refractive index is approximately 1.7, and the average real part of the permittivity is approximately 3.2. All three methods accurately exhibit the absorption peaks of lactose monohydrate at three respective frequencies of approximately 0.53 THz, 1.20 THz, and 1.37 THz, which are in good agreement with previously reported results (Fig. 7). In the process of liquid measurement, we design a sample cell using high-density polyethylene (HDPE) and utilize the transfer matrix method to eliminate the FP oscillations generated by multiple reflections and transmissions between the liquid sample and the sample cell wall. We measure the refractive indices of non-polar liquid cyclohexane and n-hexane, which are consistent with previous test results (Fig. 9). In the study of reflection THz-FDS, we use the self-referenced method to extract the accurate permittivities of methanol and ethanol, which are consistent with the fitting results of the triple Debye model (Fig. 12). Finally, we use the SSKK method to eliminate the phase error and obtain the refractive index and absorption constant of the solid-doped silicon. The measurement and computational analysis data are essentially consistent with previous research results (Fig. 14).

Conclusions As a key research direction of terahertz science and technology, terahertz spectroscopy has mainly developed two spectral systems, namely THz-TDS and THz-FDS. Between them, THz-FDS has technical advantages such as high frequency resolution, simple structure, and frequency tunability, which compensate for some defects in THz-TDS research. In this study, the system structure and data processing principle of transmission and reflection THz-FDS are discussed in detail. The transmission THz-FDS built by our research group is used to study the high-resolution terahertz spectral data of water vapor samples in the atmosphere. The transmission coefficient and refractive index of lactose monohydrate obtained by the extrema method and the Hilbert transform method are compared in detail. In addition, the transfer matrix is used to eliminate the FP resonance in the process of measuring liquid samples by the transmission method, and the accurate refractive indices of non-polar liquids n-hexane and cyclohexane are thus obtained. Furthermore, in research on continuous-wave reflection THz-FDS, the permittivities of methanol and ethanol in the terahertz frequency band are accurately obtained using the self-reference method. The SSKK method is utilized to extract the refractive index and absorption coefficient of solid-doped silicon. The above research results comprehensively verify the effectiveness of our continuous-wave THz-FDS system and corresponding data processing methods, thereby laying a good foundation for the development and application of terahertz frequency-domain spectroscopy.

Key words spectroscopy; terahertz frequency-domain spectroscopy; continuous-wave; transmission terahertz frequency-domain spectroscopy system; reflection terahertz frequency-domain spectroscopy system; permittivity; refractive index