

空气等离子体探测太赫兹超宽谱实验研究

赫君¹ 牧凯军² 杨华¹ 侯德亭¹ 马胜灿³ 石晓燕¹

¹ 信息工程大学理学院, 河南 郑州 450001
² 郑州大学物理工程学院, 河南 郑州 450001
³ 南昌航空大学材料科学和工程学院, 江西 南昌 330063

摘要 超宽谱探测技术对于高分辨率的太赫兹吸收光谱测量以及太赫兹科学研究和应用发展等方面具有重要意义。利用空气等离子体实现了太赫兹超宽谱的测量, 并对该探测机制进行了系统的实验研究, 利用该探测系统测量了两种炸药奥克托金(HMX)和太胺(PETN)的太赫兹超宽带吸收谱。结果表明太赫兹频谱宽度会随着探测光能量或偏置电场的增加而展宽, 随着探测脉冲脉宽的增大而变窄, 且利用空气等离子体产生与探测的超宽谱测量在低频区与傅里叶变换红外(FTIR)光谱术有很好的吻合。

关键词 光谱学; 太赫兹; 空气等离子体; 相干探测; 超宽谱; 光谱测量

中图分类号 O433.1 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/LOP50.103002

Experimental Study of Super-broadband Terahertz Coherent Detection with Air Plasma

He Jun¹ Mu Kaijun² Yang Hua¹ Hou Deting¹ Ma Shengcan³ Shi Xiaoyan¹

¹ College of Science, Information Engineering University, Zhengzhou, Henan 450001, China
² College of Physics Engineering, Zhengzhou University, Zhengzhou, Henan 450001, China
³ School of Material Science and Engineering, Nanchang Hangkong University, Nanchang, Jiangxi 330063, China

Abstract Super-broadband spectrum detection technology has an important significance for high-resolution terahertz (THz) absorption spectrum measurements, as well as scientific research and application of terahertz development. We use air plasma as the detection medium and successfully detect super-broadband THz spectra. The detection mechanism is investigated by experiments. We use the system to measure two kinds of explosives' super-broadband absorption spectra. The results indicate that THz spectra widths increase with pump power or bias, and super-broadband absorption spectra match well with Fourier transform infrared (FTIR) spectra in low frequency area.

Key words spectroscopy; terahertz; air plasma; coherent detection; super-broadband spectrum; spectral measurement

OCIS codes 300.6495; 040.2235; 040.1880; 040.2840

1 引言

近年来,太赫兹(THz)光谱技术在材料表征、医学诊断、环境监测和国土安全等领域逐渐展现出重要的应用潜力,也逐渐成为物理、化学、生物等基础科学研究的有效手段之一,但由于太赫兹光子能量较低,难于探测,延迟了太赫兹科学技术的应用发展。虽然随着超快光学的发展,光电导取样^[1]和电光取样^[2]技术在太赫兹时域光谱中成功实现了高信噪比的太赫兹波相干探测,但是这两种探测方法探测带宽一般相对较窄,通常在3 THz以内,而对于3 THz以上甚至几十太赫兹带宽的太赫兹超宽谱相干取样测量则很难实现。2006年连续报道的两篇有关空气产生^[3]与探测^[4]太赫兹波的文章,以空气等离子体作为强太赫兹源和探测介质,实现了高信噪比的太赫兹超宽谱探测(约10 THz)。由于空气等离子体产生和探测机制优势明显,有望解决

收稿日期: 2013-05-17; **收到修改稿日期**: 2013-06-27; **网络出版日期**: 2013-09-02

作者简介: 赫君(1983—),女,硕士,讲师,主要从事激光光学和太赫兹光学方面的研究。

E-mail: hejun614@yahoo.com.cn

远距离探测太赫兹波的难题,所以迅速成为太赫兹科学研究的热点课题之一。除能远距离探测太赫兹波之外,该技术对于促进高分辨率的太赫兹吸收光谱测量技术,以及太赫兹在物理、化学、生物等自然科学研究和应用发展方面也同样具有十分重要的作用^[5-9]。本文利用空气等离子体测量了两种炸药的超宽带吸收谱,证明了该方法的有效性。

2 空气等离子体探测太赫兹超宽谱

利用空气等离子体作为太赫兹脉冲的探测介质,具有无损伤阈值、无反射回波、无声子吸收、信噪比较高以及对热背景不敏感等优势,可实现超宽频带的太赫兹波即太赫兹超宽谱的测量。但是该探测技术较为复杂,难于掌握与实现(尤其是大于 20 THz 的超宽谱探测更难实现),因此我们重点对空气等离子体探测太赫兹超宽谱进行了实验研究,实现了约 66 THz 带宽的相干探测。

2.1 探测原理

空气等离子体探测太赫兹超宽谱机制^[10-13]是四波混频产生太赫兹波^[14]的逆过程,通过测量太赫兹波场致二次谐波信号,可以实现对太赫兹波信号的全空气全光学方法的相干测量。太赫兹波场致抽运光场二次谐波信号的产生物理过程可表示为

$$E_{2\omega}^{\text{THz}} \propto \chi^{(3)} E_{\omega} E_{\omega} E_{\text{THz}}, \quad (1)$$

式中 $E_{2\omega}^{\text{THz}}$ 是太赫兹波场致二次谐波信号(400 nm)的电场分量, $\chi^{(3)}$ 是空气等离子体的三阶非线性极化系数, E_{ω} 和 E_{THz} 分别表示光场和太赫兹波的电场分量。从(1)式可以看出如果没有外界作用,所测量到的二次谐波信号只是强度信息,而没有相位信息。

如果在空气等离子体处引入一个二次谐波信号为本振信号,则利用外差式测量方法就能实现对太赫兹波的相干测量。利用一个高压(HV)交流场与弱探测光相互作用产生 400 nm 的二次谐波信号作为本振信号,同时太赫兹波与飞秒探测光共线聚焦在高压电极处,而太赫兹场(E_{THz})、方波电场(E_{Bias})都与探测光电场方向平行。在高压偏置电场和强太赫兹电场作用下通过四波混频效应就可产生光场的二次谐波信号,由于该二次谐波的主要能量还是来源于基频光场,偏置电场和太赫兹场在此只是起诱导作用,所以二次谐波与太赫兹波、探测光场、偏置电场的方向一致。而偏置电场作用产生的二次谐波在此只是作为一个本振源($E_{2\omega}^{\text{LO}} = E_{2\omega}^{\text{Bias}}$),所以总的场致二次谐波信号产生的物理过程可表示为

$$E_{2\omega} \propto \chi^{(3)} E_{\omega} E_{\omega} (E_{\text{THz}} \pm E_{\text{Bias}}) = E_{2\omega}^{\text{THz}} \pm E_{2\omega}^{\text{LO}}, \quad (2)$$

式中“ \pm ”表示方波电场的两种相反取向。根据光电探测器的平方律检波性质,光电倍增管(PMT)所探测到的信号正比于二次谐波电场的平方,即 $I_{2\omega} \propto |E_{2\omega}|^2$, 则在一个振荡周期内 PMT 所探测到的总的二次谐波的平均光强为

$$I_{2\omega} \propto |E_{2\omega}|^2 = |\chi^{(3)} I_{\omega}|^2 [|E_{\text{THz}}|^2 + |E_{\text{Bias}}|^2 \pm 2E_{\text{THz}}E_{\text{Bias}}]. \quad (3)$$

(3)式中只有交叉项 $2E_{\text{THz}}E_{\text{Bias}}$ 会受到方波信号的调制,所以利用锁相放大器可以提取出交叉项的信息。而改变偏置电场 E_{Bias} 的电场方向, $E_{2\omega}^{\text{THz}}$ 和 $E_{2\omega}^{\text{LO}}$ 之间的位相差只是 0 和 π 的关系。因此最终所探测的信号为

$$I_{2\omega} \propto |\chi^{(3)} I_{\omega}|^2 E_{\text{THz}} E_{\text{Bias}}. \quad (4)$$

从(4)式可以看出,这种利用外置交流高压场探测太赫兹波超宽谱的方法可以充分利用激光脉冲的能量产生出强太赫兹波,由此可提高太赫兹波的电场强度从而提高最终探测的灵敏度。另外,探测脉冲焦点处的高压交流电场可保证太赫兹波的完全相干探测。

2.2 实验探测系统介绍

空气等离子体探测太赫兹超宽谱的实验系统如图 1 所示。实验中利用中心波长为 800 nm,脉宽为 50 fs,单脉冲能量为 2 mJ,重复频率为 1 kHz 的飞秒激光作为抽运源。

利用一偏振分光片将飞秒光分为两束,其中 90% 的光束能量作为抽运光,使其通过一个 I 类匹配的 β 相 BBO 倍频晶体后在空气中聚焦产生出空气等离子体,利用双频空气等离子体辐射高能太赫兹超宽谱(几百纳焦量级,频谱为几十太赫兹),而后太赫兹波被两组离轴抛物面镜准直-聚焦-准直-聚焦在空气中。其中抛物面镜 PM4 上打有小孔,这样可以方便地将另一束能量较低的探测光和太赫兹波共线聚焦在同一点(太赫兹波和探测光束的焦斑直径分别约为 800 μm 和 20 μm),同时还能有效避免系统回波的出现。在太赫兹

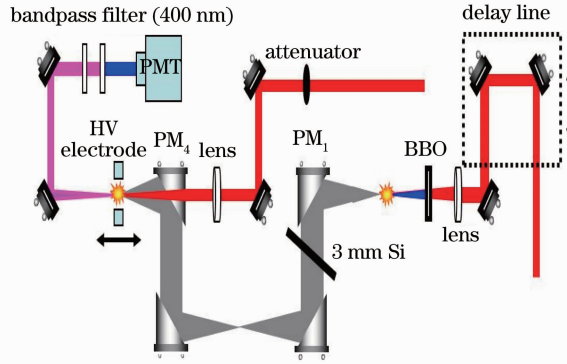


图1 空气等离子体探测太赫兹超宽谱系统示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the air plasma detection of super-broadband terahertz (THz) spectra

波和探测光的共焦点两侧加有一高压交流场(4 kV, 500 Hz), 该交流场由两个直径约为 0.5 mm, 间距约为 1 mm 的铜丝所组成的电极提供, 电极同时又会被一个从激光放大器中输出的晶体管-晶体管逻辑电平(TTL)信号触发从而提供一个 500 Hz 的方波交变电压, 以保证与激光脉冲的重复频率同步。强大赫兹场(或高压场)和探测光场相互作用会导致光场二次谐波(400 nm)的产生, 而后经过两个 400 nm 的带通滤波片二次谐波会输入到 PMT 之中。PMT 通过探测二次谐波信号可间接实现对太赫兹波信号的相干探测。在干燥氮气的环境中, 利用 50 fs 脉宽的飞秒光测量到了能量接近 $1 \mu\text{J}$, 探测带宽达 0.5~66.76 THz 的太赫兹超宽谱, 如图 2 所示。

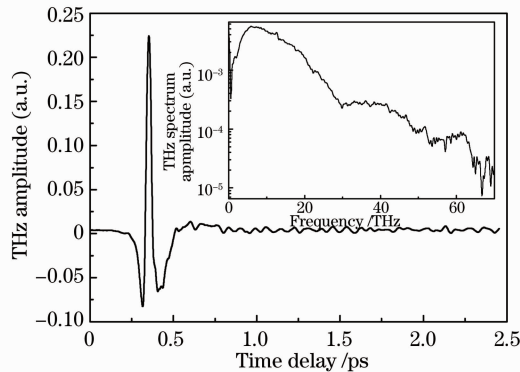


图2 太赫兹超宽谱

Fig. 2 Super-broadband THz spectrum

3 空气等离子体探测系统研究

由(4)式可知, 探测脉冲功率、偏置电场强度以及作为探测介质的气体种类等都会影响到最终的太赫兹超宽谱的探测。

将偏置电场设定为 7 kV/cm, 在 70~170 mW 的功率范围内改变探测脉冲的功率, 而后分别测量相应条件下的太赫兹超连续谱的时域波形以及它们的频谱图, 最后再将它们的太赫兹频谱进行归一化比较, 如图 3 所示, 太赫兹频谱宽度随探测光能量的增加而逐渐展宽。

如果改变太赫兹脉冲与探测脉冲的时间延迟进行扫描取样, 则(4)式需变为卷积的形式

$$I_{2\omega} \propto |\chi^{(3)} I_{\omega}|^2 E_{\text{Bias}} * E_{\text{THz}}(t), \quad (5)$$

式中 $|\chi^{(3)} I_{\omega}|^2 E_{\text{Bias}}$ 正比于偏置电场诱导的二次谐波的强度。由此我们通过调谐探测脉冲的脉宽可间接改变二次谐波的脉宽, 以此来实现不同脉宽二次谐波的太赫兹超宽谱的测量, 如图 4 所示。从图中可以明显看出空气等离子体探测的太赫兹频谱随着探测脉冲的脉宽增大而变窄, 与(5)式的理论推导结果一致。

最后, 将探测光功率固定在 110 mW 而改变偏置场强。在 5.2~9 kV/cm 的偏置电场条件下分别测得它们各自的太赫兹时域波形, 而后同样进行归一化处理, 如图 5 所示, 可以发现随着偏置电场的增加, 太赫兹

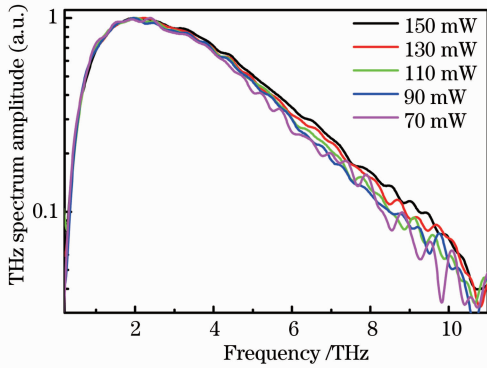


图3 不同探测光功率条件下测得的太赫兹超宽谱
Fig. 3 Super-broadband THz spectra with different pump powers

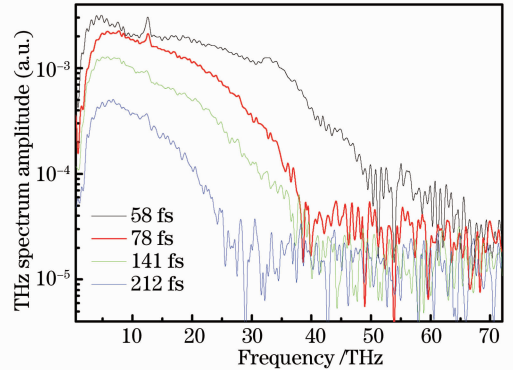


图4 不同脉宽的二次谐波实验探测结果
Fig. 4 Super-broadband THz spectra with different second harmonic pulse widths

时域波形图中的波峰与波谷的比值逐渐减小,即光学周期逐渐变短,如图5(a)所示,所以其相应的频谱宽度随偏置电场的增加而逐渐变宽,相应的峰值频率也会稍微向高频漂移,如图5(b)所示。

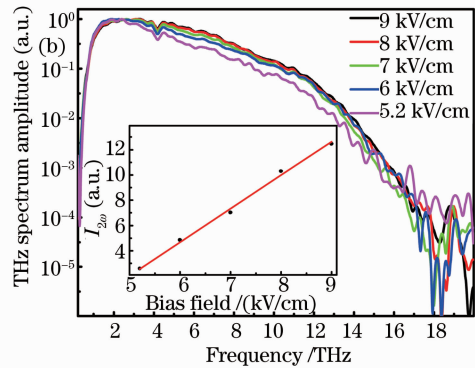
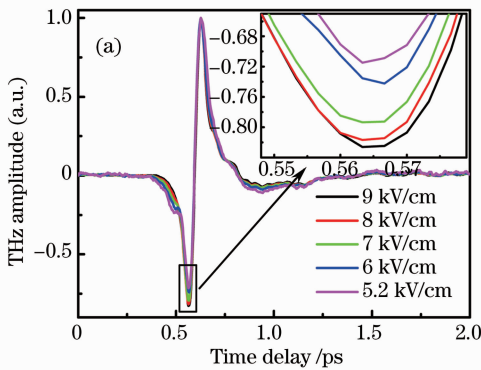


图5 不同偏置电场条件下测得的太赫兹超宽谱。(a) 时域波形;(b) 相应的频谱图

Fig. 5 Super-broadband THz spectra with different biases. (a) Time-domain waveform; (b) frequency spectra

4 太赫兹超宽吸收光谱测量

由于许多大分子或官能团的集体振动模式、电子材料的低能激励、凝聚态相位介质的低频振动模式等基本谐振都处在太赫兹波段^[15],我们可利用所研究的太赫兹超宽谱系统来探测研究这些物质的物理或化学特性。

利用空气等离子体探测机制测量了两种炸药奥克托金(HMX)和太胺(PETN)的太赫兹宽带吸收谱,并将测量结果与布鲁克公司的远红外傅里叶变换(FTIR)光谱仪的测量结果相比较,如图6所示。从图中可以

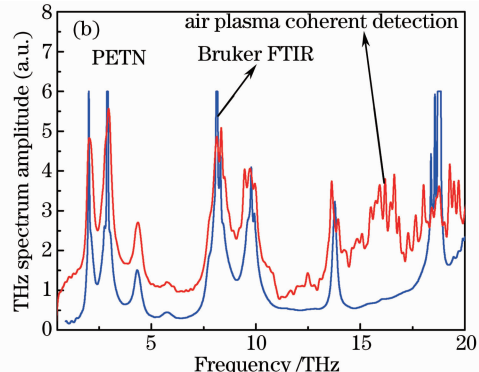
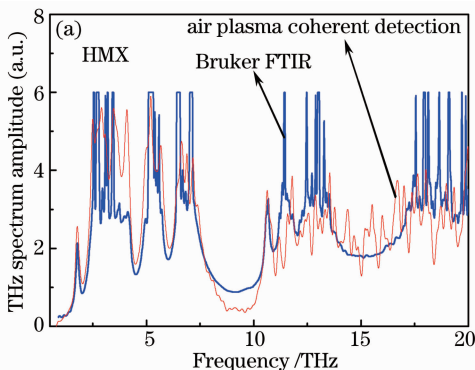


图6 (a) HMX和(b) PETN的超宽谱测量结果

Fig. 6 Super-broadband absorption spectra of (a) HMX and (b) PETN

看出利用空气等离子体产生与探测的超宽谱在低频区(小于 15 THz)与 FTIR 有很好的吻合。两种炸药在低频区的主要特征吸收峰都被测量了出来,而且由于该种探测方式为时域光谱测量,其对热背景噪声不敏感,另外它的光谱扫描有效光程也较长,从而可以达到很高的频谱分辨率(小于 20 GHz),从而可以测量出许多光谱细节。

5 结 论

基于外差探测原理,通过实验利用空气等离子体实现了 0.5~66.76 THz 超宽谱的测量。通过分别改变探测脉冲功率、抽运脉宽及偏置电场强度,发现太赫兹频谱宽度会随着探测光能量或偏置电场的增加而逐渐展宽,并随着探测脉冲脉宽的增大而变窄。利用空气等离子体探测系统对两种炸药 HMX 和 PETN 的太赫兹吸收谱进行了高光谱分辨率测量,实验结果在低频区(小于 15 THz)与 FTIR 测量结果有很好的吻合。

参 考 文 献

- 1 Masahiko Tani, Kwang-Su Lee, X C Zhang. Detection of terahertz radiation with low-temperature-grown GaAs-based photoconductive antenna using 1.55 μm probe[J]. Appl Phys Lett, 2000, 77(9): 1396–1398.
- 2 G Gallot, D Grischkowsky. Electro-optic detection of terahertz radiation[J]. J Opt Soc Am B, 1999, 16(8): 1204–1212.
- 3 Xu Xie, Jianming Dai, X C Zhang. Coherent control of THz wave generation in ambient air[J]. Phys Rev Lett, 2006, 96(7): 075005.
- 4 Dai Jianming, Xie Xu, Zhang X C. Detection of broadband terahertz waves with a laser-induced plasma in gases[J]. Phys Rev Lett, 2006, 97(10): 103903.
- 5 Matthias C Hoffmann, Nathanil C Brandt, Harold Y Hwang, *et al.*. Terahertz Kerr effect[J]. Appl Phys Lett, 2009, 95(23): 231105.
- 6 John F O'Hara, Withawat Withayachumnankul, Ibraheem Al-Naib. A review on thin-film sensing with terahertz waves[J]. J Infrared Milli Terahz Waves, 2012, 33(3): 245–291.
- 7 Alexander I McIntosh, Bin Yang, Stephen M Goldup, *et al.*. Terahertz spectroscopy: a powerful new tool for the chemical sciences[J]. Chem Soc Rev, 2012, 41(6): 2072–2082.
- 8 Zhang Cunlin, Mu Kaijun. Terahertz spectroscopy and imaging[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2010, 47(2): 023001.
张存林, 牧凯军. 太赫兹波谱与成像[J]. 激光与光电子学进展, 2010, 47(2): 023001.
- 9 Liu Shenggang, Zhong Renbin. Recent development of terahertz science and technology and its applications[J]. J University of Electronic Science and Technology, 2009, 38(5): 481–486.
刘盛纲, 钟任斌. 太赫兹科学技术及其应用的新发展[J]. 电子科技大学学报, 2009, 38(5): 481–486.
- 10 N Karpowicz, J Dai, X Lu, *et al.*. Coherent heterodyne time-domain spectrometry covering the entire “terahertz gap”[J]. Appl Phys Lett, 2008, 92(1): 011131.
- 11 X Lu, N Karpowicz, Y Chen, *et al.*. Systematic study of broadband terahertz gas sensor[J]. Appl Phys Lett, 2008, 93(26): 261106.
- 12 X Lu, N Karpowicz, X C Zhang. Broadband terahertz detection with selected gases[J]. J Opt Soc Am B, 2009, 26(9): A66–A73.
- 13 Dai Jianming, Xie Xu, Zhang Xicheng. Sensing pulsed THz waves with ambient air[J]. Physics, 2007, 36(3): 191–194.
戴建明, 谢旭, 张希成. 利用空气来探测脉冲太赫兹波[J]. 物理, 2007, 36(3): 191–194.
- 14 D J Cook, R M Hochstrasser. Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air[J]. Opt Lett, 2000, 25(6): 1210–1212.
- 15 Wang Gao, Zhou Hanchang, Yao Baodai, *et al.*. Progress of thrahertz spectroscopy detection technique of explosives[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2011, 48(1): 013001.
王高, 周汉昌, 姚宝岱, 等. 爆炸物太赫兹光谱探测技术研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2011, 48(1): 013001.