

基于太赫兹技术在线快速识别邮件隐匿危险品

李涛¹, 张良¹, 何建安^{2,3}, 张思祥^{1*}, 顾大勇^{2,3**}

¹河北工业大学机械工程学院, 天津 300401;

²深圳市检验检疫科学研究院, 广东 深圳 518010;

³深圳国际旅行卫生保健中心, 广东 深圳 518033

摘要 太赫兹的指纹谱特性和对非极性物质的穿透性使其在邮件隐匿危险品检测领域有巨大的应用潜力。目前, 常用的太赫兹光学参数提取算法存在计算复杂、时间长和需要预知样品厚度等缺点。针对常规算法的缺点和邮件检测实时性高的要求, 提出了一种根据太赫兹透射系数幅值直接计算特征吸收频率的方法。该方法只需要 1 次计算, 节省了大量的计算时间。为了进一步提高处理速度, 摒弃多次测量、均值滤波的数据处理方法, 提出异常数据滤波结合低通滤波的数据处理方法, 使数据测量 1 次完成。蔗糖和二苯甲酮样品的测试结果表明, 所提方法与常规算法得到的特征吸收频率一致。

关键词 光谱学; 危险品检测; 太赫兹时域光谱; 邮件; 特征吸收谱

中图分类号 O433.4

文献标识码 A

doi: 10.3788/LOP56.233001

Rapid Online Identification of Hazardous Substances in Mail Using Terahertz Technology

Li Tao¹, Zhang Liang¹, He Jian'an^{2,3}, Zhang Sixiang^{1*}, Gu Dayong^{2,3**}

¹School of Mechanical Engineering, Hebei University of Technology, Tianjin 300401, China;

²Shenzhen Academy of Inspection and Quarantine, Shenzhen, Guangdong 518010, China;

³Shenzhen International Travel Health Care Center, Shenzhen, Guangdong 518033, China

Abstract The terahertz waves exhibit spectral fingerprint characteristics and penetrability for nonpolar substances, which have huge potential applications in the identification of hazardous substances hidden in mail. Currently, the commonly used terahertz optical-constant-extraction algorithms have the disadvantages of being complicated and requiring lengthy computations as well as samples with known thicknesses. In this study, we propose a method of directly calculating the characteristic absorption frequencies based on the amplitudes of the terahertz transmission coefficients to alleviate the shortcomings associated with the conventional algorithms and satisfy the rapid-processing requirement of real-time mail detection. The calculation procedure is considerably simplified by using the proposed method because the calculation only needs to be conducted once. To further improve the processing speed, we propose data processing methods that use abnormal data filtering and low-pass filtering instead of requiring multiple measurements and average filtering. Therefore, all the data measurements can be completed once. Furthermore, the characteristic absorption frequencies of the sucrose and benzophenone samples obtained using the proposed method are consistent with those obtained using the conventional method.

Key words spectroscopy; identification of hazardous substances; terahertz time-domain spectroscopy; mail; characteristic absorption spectroscopy

OCIS codes 300.6495; 300.1030; 160.4760; 320.7100

收稿日期: 2019-02-22; 修回日期: 2019-03-05; 录用日期: 2019-06-03

基金项目: 国家重点研发计划(2018YFC0809200)

* E-mail: 13502063552@163.com; ** E-mail: wanhood@163.com

1 引言

随着快递业务的飞速发展,邮件的安全问题显得尤为重要。在邮件中隐藏毒品、爆炸物等危险品已成为犯罪分子的常用手段。随着生物反恐的提出,检测邮件中隐匿的有害生物因子成为一个急需解决的问题。太赫兹(THz)技术以其独有的性质有望用于邮件安全检测。

THz 波段是跨越 0.1 THz 到 10 THz 频率的波段^[1]。THz 波与无线电波类似,可以透过各种物质进行传播,如纸张,布料,塑料等;同时,THz 波还具有光波性质,可以实现传播、反射和折射等。爆炸物、毒品等危险品在 THz 波段具有独特的光谱特征,称为指纹谱。THz 光子的能量低,不会对邮件中的物质造成破坏或电离^[2]。基于这些特性,THz 技术被用于邮件中隐匿爆炸物、毒品等危险品的无损检测和识别^[3-5]。通常,将利用 THz 时域光谱(THz-TDS)技术得到的样品的折射率、吸收系数等光学参数作为物质检测和识别的主要依据^[6]。提取光学参数的常规算法都比较复杂,所需时间长,而且依赖于样品厚度。而邮件检测对时间有严格要求,因此迫切需要一种快速的在线识别方法。本文提出一种利用透射系数幅值直接获取特征吸收频率的方法,以满足邮件检测的快速需求。为了进一步提高处理速度,提出了滤除随机噪声的滤波方法,用以避免多次测量。

2 方法

THz 时域光谱是一种用于表征 THz 频率范围内样品的强大技术。与非相干测量方案不同,时域光谱技术可以得到 THz 电场的幅度和相位特征^[6-7],进而获取样品的光学参数,作为物质识别的依据。获取光学参数的常用方法有菲涅耳公式法和全变差法。

2.1 菲涅耳公式法

Duvillaret 等^[8]提出了菲涅耳公式法,并利用菲涅耳公式建立了样品的透射模型。为了便于计算,Duvillaret 对该模型进行了一系列假设。

当 THz 脉冲通过样品传播时,样品的散射和吸收作用会改变 THz 脉冲的强度和位置,如图 1 所示。利用快速傅里叶变换可以方便地获得 THz 脉冲的频谱。样品的复折射率 $\bar{n}(\omega) = n(\omega) - jk(\omega)$,其中 ω 为角频率, $n(\omega)$ 为样品的折射率, $k(\omega)$ 为消光系数。根据样品信号的频谱 $E_{\text{sam}}(\omega)$ 和参考信号

的频谱 $E_{\text{ref}}(\omega)$,可以得到透射系数为

$$H(\omega) = \frac{E_{\text{sam}}(\omega)}{E_{\text{ref}}(\omega)} = A(\omega) \exp[-j\phi(\omega)], \quad (1)$$

式中: $A(\omega)$ 为透射系数的幅值; $\phi(\omega)$ 为透射系数的相位。在弱吸收、厚样品的改进算法中,忽略标准具(法布里-珀罗)效应,可以直接得到光学参数的解析表达式为

$$n(\omega) = \frac{\phi(\omega)c}{\omega L} + n_0, \quad (2)$$

$$\alpha(\omega) = \frac{2k(\omega)\omega}{c} = \frac{2}{L} \ln \left\{ \frac{4n(\omega)}{A(\omega)[n(\omega) + n_0]^2} \right\}, \quad (3)$$

式中: c 为真空中 THz 波的传播速度; L 为样品厚度; n_0 为与样品接触的介质(一般为空气)的折射率; $\alpha(\omega)$ 为吸收系数。计算样品折射率和吸收系数的前提是已知准确的样品厚度,样品厚度误差会给光学参数的计算结果带来误差^[9]。随后对该方法进行改进可以实现厚度的优化,但也需要厚度的估值。

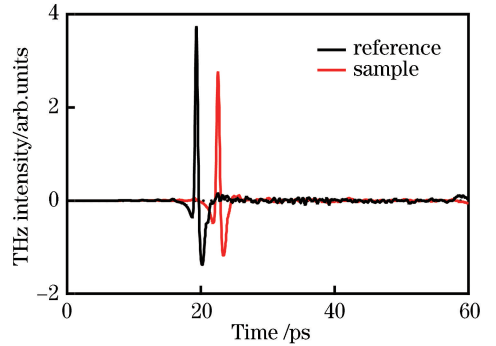


图 1 THz 脉冲通过样品前、后的波形
Fig. 1 Waveforms of THz pulse before and after passing through sample

2.2 全变差法

为了获取更准确的光学参数,Dorney 等^[10]提出了一种全变差最优法,该方法可以很好地消除标准具(法布里-珀罗)效应的影响。该方法首先定义透射系数理论模型与测量值之间的总误差为 E_t ,该误差是相位绝对误差 E_p 与幅度绝对误差 E_m 的线性组合。针对某厚度,通过最小化总误差 E_t 来求解对应的光学参数,同时定义总变差 T_v ,可表示为

$$T_v = \sum_m D(m), \quad (4)$$

$$D(m) = |n(m-1) - n(m)| + |k(m-1) - k(m)|, \quad (5)$$

式中: m 为某一角频率; $D(m)$ 为光学参数的变差; $n(m)$ 为折射率; $k(m)$ 为消光系数。在一个厚度区间,计算多个厚度的最优光学参数对应的总变差。

其中,总变差最小值对应的厚度为样品的真实厚度。最优厚度对应的光学参数为样品的真实光学参数。随后,Pupeza等^[11-13]沿用了总变差厚度最优理论,并对其进行了各种优化。

2.3 算法改进

利用上述方法虽然可以获得准确的光学参数,但都存在一定的弊端。首先,这些算法都依赖于样品厚度,而样品厚度误差会给计算结果带来更大的误差;其次,这些方法计算过程复杂,并且所需时间长。以全变差优化方法为例,最小化透射系数理论模型与测量值之间的误差需要进行多次迭代。而迭代的结果只对应一个样品厚度,算法需要对几十个厚度进行计算,最后得到最优光学参数。按照该方法进行计算,少则几分钟,多则几小时才能完成一组光学参数的计算。而邮件的检测都是在线完成的,对时间的要求很高,需要快速获取特异性的判据。

分子的振动和转动会引起复折射率发生变化,而折射率和吸收系数(消光系数)分别是复折射率的实部和虚部,因此折射率和吸收系数的变化都是由分子结构和分子间相互作用决定的。由(2)式和(3)式可知,折射率由透射系数的相位决定,吸收系数由折射率和透射系数的幅值决定。因此,透射系数的相位、幅值,以及折射率、吸收系数会在同一频率(频段)下发生变化,这些频率由被测物质的分子结构和分子间相互作用决定,具有特异性。可以通过透射系数幅值直接得到特征吸收频率,不用计算吸收系数,从而可以避免预知待测样品的厚度。

定义特征光谱为

$$\beta(\omega) = p | \ln[A(\omega)] |, p \in \mathbb{R}, \quad (6)$$

式中: p 为调节系数, p 的取值不影响吸收频率的结果。由透射系数幅值决定的特征光谱 $\beta(\omega)$,会在分子振动或转动频率处产生波峰,该频率即为特征吸收频率。

3 实验结果与分析

3.1 实验系统

采用德国 Menlo Systems 公司的 TERA K15 型全光纤时域光谱仪进行实验。TERA K15 型全光纤时域光谱仪包括集成了 figure 9[®] 锁模技术的光纤激光器、附带机械延迟线的光纤耦合光路,其动态范围可达 80 dB,频谱分辨率为 1.2 GHz。激光的重复频率为 100 MHz,波长为 1560 nm,通过分光镜被分成抽运光束和探测光束^[14]。抽运光束通过耦合光纤照射在钢镓砷(InGaAs)光电导天线,产生单

周期 THz 脉冲。发射的 THz 脉冲透过样品后,聚焦到 THz 探测器。机械延迟线用于改变 THz 脉冲与探测脉冲之间的延迟时间,并且可以通过扫描该延迟时间并执行重复采样测量来获得 THz 电场波形。

3.2 数据处理

在进行 THz 时域光谱测量过程中会产生随机误差,影响测量结果。到目前为止,国内外已经报道了许多影响 THz 信号的随机性来源,包括激光强度的波动、光学和电子噪声、延迟线的抖动等^[13]。通过对一系列实测信号进行时域平均,可以减小测量中的随机误差,扩大动态范围^[15-19]。但该滤波方法在邮件检测中并不适用。邮件数量过于庞大,且要求对邮件的安全检测越快越好。为了提高检测速度,每个点的测量最好能 1 次完成。这样就需要摒弃均值滤波的数据处理方法,采用新的数据处理方法。

在此不对时域信号进行处理,而是直接得到透射系数。然后对透射系数进行如下处理:异常数据滤波结合低通滤波。随机误差的影响使得在某些采样点得到的样品信号高于正常信号,参考信号低于正常信号,而样品和参考信号在该点的比值会异常大,如图 2 所示。这样的数据属于无效数据,应直接舍弃,并利用相邻 n 个点的均值来代替。低通滤波器可以滤除由随机误差产生的透射系数的波动。为了消除低通滤波器对信号相位的影响,选择零相移的二阶巴特沃思低通滤波器。

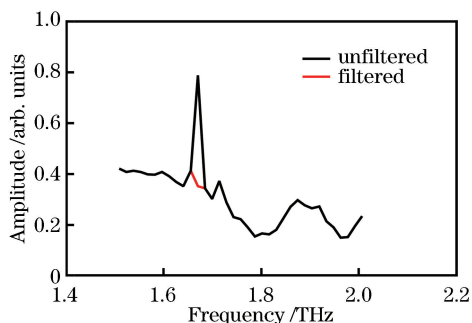


图 2 透射系数的异常数据在滤波前后的对比

Fig. 2 Comparison of abnormal data of transmission coefficient before and after filtering

3.3 结果分析

选取两种在 THz 波段存在明显吸收峰的样品(蔗糖和二苯甲酮)进行验证。将蔗糖和二苯甲酮压成直径为 13 mm 的薄片,以空气作为参考信号(空气的折射率 n_0 取 1),在相同的环境下,分别获取空气、蔗糖和二苯甲酮的时域 THz 信号。为了模拟邮

件检测的实时性和快速性,每个信号只测量1次。

利用蔗糖和空气的 THz 频域光谱的比值,计算透射系数。采用 3.2 节中提出的数据处理方法,对透射系数进行处理。图 3 所示为滤波前后蔗糖的透射系数幅值曲线。其中:散点图为滤波前的蔗糖样品透射系数,尖峰和波动是由随机噪声引起的误差;filtered 曲线是异常数据滤波后的曲线,是将透射系数中明显错误(过大或者过小)的数据滤除后得到的;Butterworth LF 是经过零相移的二阶巴特沃思低通滤波器滤波后的数据,滤除了高频的随机噪声,不会影响透射系数幅值曲线的包络,也不会影响特征频率的获取。

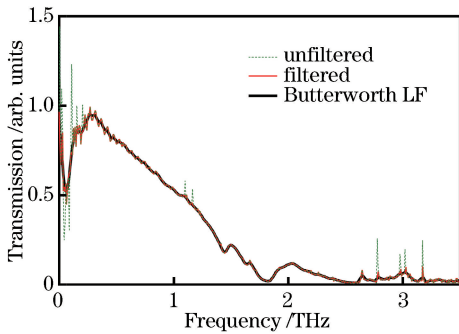


图 3 滤波前、后蔗糖的透射系数幅值

Fig. 3 Amplitude of transmission coefficient of sucrose before and after filtering

经过异常数据滤波和二阶巴特沃思低通滤波后得到了蔗糖的透射系数幅度曲线,取 $p=0.8$,利用(6)式得到特征光谱曲线,如图 4 中黑色加粗曲线所示,对应的特征吸收频率为 1.82 THz 和 2.56 THz。为了验证本文方法的计算结果,采用常规算法进行测试和计算。首先对空气、蔗糖样品进行 20 次测量并取均值,利用(2)式和(3)式计算折射率和吸收系数。采用千分尺测量得到蔗糖样品的厚度为 1.83 mm,进而得到蔗糖的折射率,如图 5 所示,吸收光谱如图 4 所示,特征吸收频率为 1.81 THz 和 2.57 THz。两种方法得到的特征吸收频率基本一致,但本文提出的方法在测量、数据处理、计算等方面都节省了大量时间。

对二苯甲酮样品进行同样的处理和计算,样品厚度为 1.97 mm,得到的光谱如图 6 所示。其中:absorbance 曲线是常规算法计算得到的吸收谱,吸收频率为 0.83 THz 和 1.81 THz; $n|\ln[A(\omega)]|$ 曲线为根据透射系数幅值得到的特征光谱,计算得到的特征吸收频率为 0.83 THz 和 1.80 THz,与常规算法得到的结果吻合得很好。

经过两种样品的验证可知,由异常数据滤波结

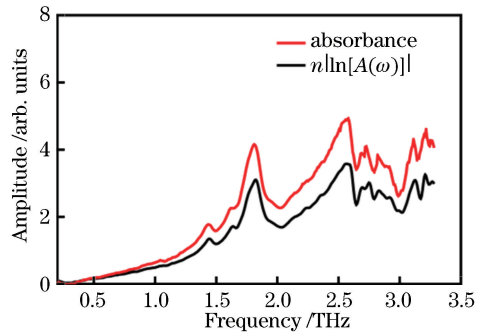


图 4 蔗糖的吸收系数和透射系数幅值

Fig. 4 Amplitudes of absorption coefficient and transmission coefficient of sucrose

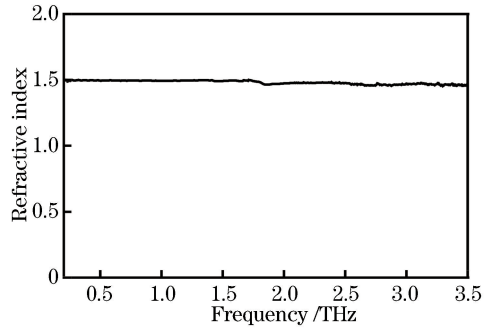


图 5 蔗糖的折射率

Fig. 5 Refractive index of sucrose

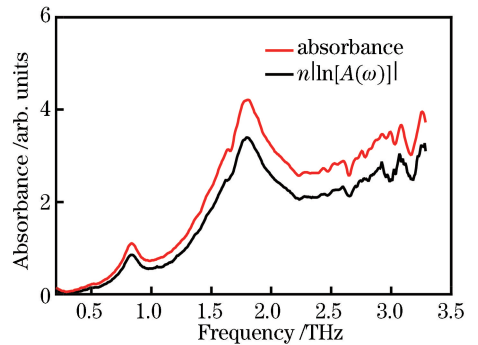


图 6 二苯甲酮的吸收系数和透射系数幅值

Fig. 6 Amplitudes of absorption coefficient and transmission coefficient of benzophenone

合零相移的二阶巴特沃思低通滤波的数据处理方法,再加上透射系数幅值直接计算特征吸收频率的方法与常规算法计算的结果一致,但计算速度快很多。常规算法需要多次测量、优化、迭代,而所提方法 1 次即可完成采集和计算,适用于邮件检测这样对速度有要求的场合。

4 结 论

在电子商务飞速发展的今天,邮件的安全问题尤为重要。常用的光学参数提取算法存在计算过程

复杂、计算时间长、需要预知或预测样品厚度等弊端,不适合邮件在线安全检测。通过分析各种光学参数提取算法的基础公式,同时结合折射率和吸收系数变化的根源,提出利用透射系数幅值直接得到特征吸收频率。该方法计算简单,不需要复杂的迭代过程和优化过程,大幅提高了特征吸收频率的计算速度,适合实时性要求高的在线检测。通过摒弃均值滤波,结合异常数据滤波和低通滤波,很好地滤除了随机误差,实现单次测量直接获取结果,更好地提高了处理速度。通过蔗糖和二苯甲酮两种样品的测试验证,该方法能快速、有效地获取样品的特征吸收频率,为 THz 波在邮件隐匿危险品检测方面的应用奠定了基础。

参 考 文 献

- [1] Hangyo M. Development and future prospects of terahertz technology[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2015, 54(12): 120101.
- [2] Reimann K. Table-top sources of ultrashort THz pulses[J]. *Reports on Progress in Physics*, 2007, 70(10): 1597-1632.
- [3] Choi K, Hong T, Ik Sim K, *et al.* Reflection terahertz time-domain spectroscopy of RDX and HMX explosives [J]. *Journal of Applied Physics*, 2014, 115(2): 023105.
- [4] Yang X, Zhao X, Yang K, *et al.* Biomedical applications of terahertz spectroscopy and imaging [J]. *Trends in Biotechnology*, 2016, 34(10): 810-824.
- [5] Li J L, Cui S H, Zhang Z W, *et al.* Research of terahertz detector based on resonant tunneling diode enhanced by bowtie antenna[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2018, 45(8): 0814002.
李金伦, 崔少辉, 张振伟, 等. 蝶形天线增强的共振隧穿二极管太赫兹探测器研究[J]. *中国激光*, 2018, 45(8): 0814002.
- [6] Scheller M. Data extraction from terahertz time domain spectroscopy measurements [J]. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 2014, 35(8): 638-648.
- [7] Fan M B, Cao B H, Tian G Y. Enhanced measurement of paper basis weight using phase shift in terahertz time-domain spectroscopy[J]. *Journal of Sensors*, 2017, 2017: 3520967.
- [8] Duvillaret 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*, 1996, 2(3): 739-746.
- [9] Withayachumnankul W, Fischer B M, Abbott D. Material thickness optimization for transmission-mode terahertz time-domain spectroscopy[J]. *Optics Express*, 2008, 16(10): 7382-7396.
- [10] 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.
- [11] Pupeza I, Wilk R, Koch M. Highly accurate optical material parameter determination with THz time-domain spectroscopy [J]. *Optics Express*, 2007, 15(7): 4335-4350.
- [12] Zaytsev K I, Gavdush A A, Lebedev S P, *et al.* Novel algorithm for sample material parameter determination using THz time-domain spectrometer signal processing[J]. *Journal of Physics: Conference Series*, 2014, 486(1): 012018.
- [13] Kou K, Zhao G Z, Liu Y, *et al.* Simultaneously determinations of sample thickness and refractive index by terahertz time-domain spectroscopy [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2015, 42(8): 0815001.
寇宽, 赵国忠, 刘英, 等. 利用太赫兹时域光谱同时确定样品厚度和折射率[J]. *中国激光*, 2015, 42(8): 0815001.
- [14] Zhang W T, Wang S Y, Zhan P P, *et al.* Method of identifying red wood based on terahertz time-domain spectroscopy[J]. *Acta Optica Sinica*, 2017, 37(2): 0230006.
张文涛, 王思远, 占平平, 等. 基于太赫兹时域光谱技术的红木检测方法[J]. *光学学报*, 2017, 37(2): 0230006.
- [15] Withayachumnankul W, Fischer B M, Lin H, *et al.* Uncertainty in terahertz time-domain spectroscopy measurement [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2008, 25(6): 1059-1072.
- [16] Withayachumnankul W, Naftaly M. Fundamentals of measurement in terahertz time-domain spectroscopy [J]. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 2014, 35(8): 610-637.
- [17] Puc U, Abina A, Rutar M, *et al.* Terahertz spectroscopic identification of explosive and drug simulants concealed by various hiding techniques[J]. *Applied Optics*, 2015, 54(14): 4495-4502.
- [18] Withayachumnankul W, O'Hara J F, Cao W, *et al.* Limitation in thin-film sensing with transmission-mode terahertz time-domain spectroscopy[J]. *Optics*

- Express, 2014, 22(1): 972-986.
- [19] Li T J, Sun Y, Shao G F, *et al.* Terahertz nondestructive detection method of ceramic matrix composites [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2018, 55(6): 061101.
- 李铁军, 孙跃, 邵桂芳, 等. 陶瓷基复合材料的太赫兹无损检测方法 [J]. 激光与光电子学进展, 2018, 55(6): 061101.