

## 单发太赫兹时域光谱技术

张冬煜<sup>1,2</sup>, 彭晓昱<sup>1\*</sup>, 唐福<sup>1</sup>, 杜海伟<sup>1</sup>, 罗春华<sup>2\*</sup>

1. 中国科学院重庆绿色智能技术研究院, 太赫兹技术研究中心, 重庆 400714  
2. 长春理工大学光电工程学院, 吉林 长春 130022

**摘要** 太赫兹时域光谱技术(THz-TDS)广泛应用于材料、生物医学、化学、药学、安检等诸多领域。传统扫描式 THz-TDS 技术需要通过改变探测光延时逐点扫描并重构时域信号, 仅适合于具有较高重复频率且稳定的太赫兹辐射源情形下的样品探测。在低重复频率或涨落较大的太赫兹辐射源情形下和不可逆过程中样品的探测, 扫描式 THz-TDS 不再适用, 需要使用单发 THz-TDS 技术, 单发 THz-TDS 技术原则上仅需要一个激光脉冲就可以获取一个完整的太赫兹时域脉冲波形。介绍几种主要的单发 THz-TDS 探测技术, 这些技术都利用了电光晶体的泡克尔斯效应, 通过测量探测光的某个物理量的变化来提取太赫兹信号。根据探测方法不同可分为光谱编码、空间编码和互相关等技术。在光谱编码技术中, 探测光不同频率成分在时间上发生分离, 不同时间成分分别被太赫兹脉冲不同时刻电场调制, 通过测量探测光各个频率被太赫兹脉冲调制前后的光谱的变化提取太赫兹脉冲波形。该方法光路简单, 测量结果直观, 有较高的信噪比, 但其时间分辨率较低, 且被测太赫兹信号容易产生失真。为提高被测信号的时间分辨率, 有人提出了空间编码技术, 即不同位置探测光分别被太赫兹脉冲不同时刻电场调制, 通过测量探测光各个位置太赫兹脉冲调制前后的光强变化提取太赫兹脉冲波形。根据不同空间展开方法可分为一维空间编码技术和二维空间编码技术。空间编码技术中虽然有较高的时间分辨率, 但由于探测光在空间展开能量分散使得其信噪比相对较低。此外, 还有一种较高时间分辨率的技术即互相关技术, 可分为共线互相关和非共线互相关技术。在非共线互相关技术中, 被太赫兹脉冲调制的激光啁啾脉冲与短脉冲互相关作用产生二次谐波, 通过太赫兹脉冲调制前后二次谐波空间分布变化来提取太赫兹信号; 在共线互相关技术中被太赫兹脉冲调制的啁啾脉冲与短脉冲共线入射到光谱仪, 通过干涉条纹提取太赫兹信号, 该技术提高了时间分辨率和信噪比, 但光路布置复杂, 不能进行实时监测。回顾了这几种单发 THz-TDS 探测技术的发展历程, 综述探测技术的原理、实验方案和测量结果, 并讨论了这些探测技术的优势和不足。

**关键词** 太赫兹时域光谱技术; 单发太赫兹时域光谱探测技术; 电光效应

**中图分类号:** O433 **文献标识码:** R **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2019)05-1377-09

### 引言

太赫兹波是指频率在 0.1~10 THz、波长为 0.03~3 mm 的电磁波, 在电磁波谱中位于微波和红外波段之间, 是连接电子学与光子学的桥梁。太赫兹波主要应用于太赫兹光谱<sup>[1]</sup>、太赫兹成像<sup>[2]</sup>, 并可望应用于大容量短距离无线通信<sup>[3]</sup>和战场安全通讯等技术中。近年来, 太赫兹光谱技术得到快速发展, 已在爆炸物检测<sup>[4]</sup>、材料分析<sup>[5]</sup>和生物大分子

检测<sup>[6]</sup>等诸多领域展现了广泛的应用前景。

太赫兹光谱探测技术可分为相干探测和非相干探测技术。傅里叶变换红外光谱仪(FTIR)中使用的是非相干探测方法, 只能获得光谱的强度或振幅信息。太赫兹时域光谱(THz time domain spectroscopy, THz-TDS)技术使用相干探测方法, 这些相干探测技术包括光电导天线探测、电光取样探测、空气相干探测等。利用 THz-TDS 探测技术, 不仅可以获得被探测物的太赫兹波振幅信息, 还能从中提取相位信息。传统的 THz-TDS 探测技术采用扫描探测, 即通过改变

收稿日期: 2018-02-13, 修订日期: 2018-06-16

基金项目: 国家重点基础研究发展计划(973 计划)(2015CB755401), 变革性技术关键科学问题(2017YFA0701002), 中国科学院重庆绿色智能技术研究院创新研究基金项目(Y52A010V10), 重庆市基础科学与前沿技术研究专项重点项目(cstc2015jcy jBX0030)资助

作者简介: 张冬煜, 1991 年生, 长春理工大学光电工程学院硕士研究生 e-mail: zhangdongyu@cigit.ac.cn

\* 通讯联系人 e-mail: lch@cust.edu.cn; xypeng@cigit.ac.cn

泵浦光和探测光之间的时间延迟逐点测量被太赫兹脉冲电场调制后的探测光光强并重构完整的太赫兹时域波形。THz-TDS 技术探测信噪比高、灵敏度高和时间分辨率高(在扫描精度足够高的情形下取决于探测光的脉宽),目前得到广泛应用。然而基于扫描方法的 THz-TDS 技术需要对每一点多次测量取平均值并且因逐点扫描而需要耗费较长时间才能重构一个完整的太赫兹时域波形,因此,扫描式 THz-TDS 技术只适用于具有高重复频率且较稳定的太赫兹脉冲辐射情形下以及具有重复性好或者可逆过程中的样品探测。在太赫兹脉冲重复频率较低的情形或者太赫兹源波动很大或很不稳定情形中,以及在研究材料的瞬态变化、物质损伤和结构相变等不可逆过程时,扫描式 THz-TDS 技术不再适用。为此,科研工作者先后提出了几种单发 THz-TDS 探测技术。

本文主要介绍单发 THz-TDS 探测技术的发展历程,综述探测技术的基本原理、实验方案和测量结果,并对这几种技术进行详细比较和讨论。

## 1 单发 THz-TDS 探测基本原理

到目前为止,所有单发 THz-TDS 技术都利用了电光晶体的线性电光效应即泡克尔斯效应(Pockels effect)的基本原理,这与扫描式电光取样(EOS)技术的基本原理相同,所以目前的单发 THz-TDS 技术实际上都是单发电光取样技术。电光取样技术中,利用电光晶体的线性电光效应,测量探测光的偏振态变化来提取被测太赫兹电场信号。电光效应是指在外界电场的作用下,晶体的介电常数,即晶体折射率发生改变,某些本来是各向同性的介质会产生双折射现象,而本来有双折射性质的晶体,它的双折射性质也会发生变化的现象<sup>[7]</sup>。材料的折射率  $n(E)$  是与电场  $E$  有关的函数

$$n(E) = n_0 + a_1 E + \frac{1}{2} a_2 E^2 + \dots \quad (1)$$

式(1)中,  $n_0$  是没有外加电场时的折射率,  $a_1$  和  $a_2$  为常数。引入两个系数  $\gamma$  和  $\xi$  作为电光系数

$$\gamma = -2a_1/n_0^3, \quad \xi = -a_2/n_0^3$$

$$n(E) = n_0 - \frac{1}{2} \gamma n_0^3 E - \frac{1}{2} \xi n_0^3 E^2 + \dots \quad (2)$$

高次项可以被忽略。等式右端第二项与电场为线性关系,称为泡克尔斯效应。

泡克尔斯效应公式为

$$n(E) = \frac{1}{2} \gamma n_0^3 E \quad (3)$$

式(3)中,  $\gamma$  为泡克尔斯系数<sup>[8]</sup>。

在太赫兹电光晶体探测中,太赫兹波电场使得电光晶体的折射率发生各向异性改变,即诱导出双折射率,且双折射率的改变量与太赫兹波的电场成正比。而当另一束探测光同时经过晶体时,此探测光的偏振态会发生改变。一般使用具有闪锌矿结构的电光晶体,入射角  $\phi$ , 方位角为  $\langle 110 \rangle$ , 双折射  $\Delta n$  可表示为

$$\Delta n = \frac{n_0^3 \gamma E}{2} \sqrt{1 + 3 \sin^2 \phi} \quad (4)$$

由式(3)可知,当没有太赫兹波电场时,  $\Delta n = 0$ , 若存在太赫

兹电场,则  $\Delta n$  与电场成正比。电光晶体厚度是  $d$ 。使得电光效应引起的探测光相位延迟

$$\Gamma = \frac{2\pi d \Delta n}{\lambda} \quad (5)$$

测量探测光因外加电场调制而导致的偏振态变化有平衡测量<sup>[9]</sup>和消光测量<sup>[10]</sup>两种主要形式。扫描式 EOS 技术主要基于平衡测量方法和锁相放大技术得到太赫兹波时域信号,具有较高的灵敏度和信噪比<sup>[11]</sup>。在单发 EOS 技术中主要采用消光测量方法,即使用一对正交的偏振器,在没有太赫兹脉冲调制情况下,经过第一个偏振器(起偏器)后的线偏振探测光经过电光晶体后再穿过第二个偏振器(检偏器),此时透过率最小。当受到太赫兹脉冲电场调制时,由于电光效应改变探测光偏振态,因而探测光具有与检偏器偏振方向相同的分量,故可探测到经太赫兹脉冲调制前后某个物理量的变化(如探测光的光强、相位等),根据这一变化来提取太赫兹脉冲的时域波形<sup>[12]</sup>。

## 2 单发 THz-TDS 探测技术

根据探测方法和实现途径的不同,目前单发 THz-TDS 技术可以分为光谱编码技术、空间编码技术和互相关技术等。下面具体介绍这几种探测技术。

### 2.1 光谱编码技术

1998 年张希成组首次提出一种单发 THz-TDS 探测技术,即光谱编码技术(spectral-encoding technique)<sup>[13]</sup>。如图 1 所示,探测光经过光栅对( $\alpha < 0$ )进行展宽,不同频率成分在时间上发生分离,使飞秒脉冲展宽为啁啾脉冲,脉冲的短波部分超前于长波部分。当啁啾脉冲与太赫兹脉冲共线到达电光晶体并在电光晶体中相遇时,探测光经过检偏器后进入光谱仪,利用光谱仪检测不同频率探测光经调制前后的光强变化,经过频率(波长)—时间坐标变换,提取被测太赫兹脉冲时域波形,如图 2 所示。

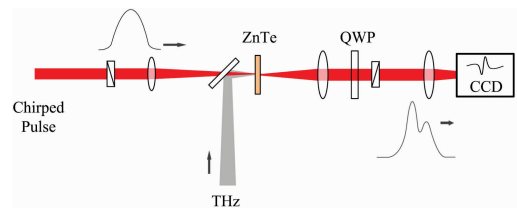


图 1 光谱编码技术原理图

Fig. 1 Schematic diagram of spectral-encoding technique

下面以单周期太赫兹脉冲探测为例来详细说明光谱编码技术的工作原理。

设原始线偏振探测激光脉冲为高斯型,光束中心频率为  $\omega_0$ , 脉宽为  $T_0$

$$E_0(t) = \exp(-t^2 T_0^{-2} - i\omega_0 t) \quad (6)$$

经过合适展宽,啁啾探测脉冲电场可表示为

$$E_c(t) = \exp(-t^2 T_c^{-2} - i\alpha t^2 - i\omega_0 t) \quad (7)$$

其中,  $T_c$  是啁啾探测脉冲脉宽,  $\alpha$  为啁啾因子,  $2\alpha \approx \pm \Delta\omega_0 / T_c$ , 即可经过光栅对( $\alpha < 0$ )展宽,也可经过色散玻璃( $\alpha > 0$ )

展宽。假设被测太赫兹脉冲为双极单周期形式

$$E_{\text{THz}}(t) = -tT_z^{-1} \exp(-t^2 T_c^{-2}) \quad (8)$$

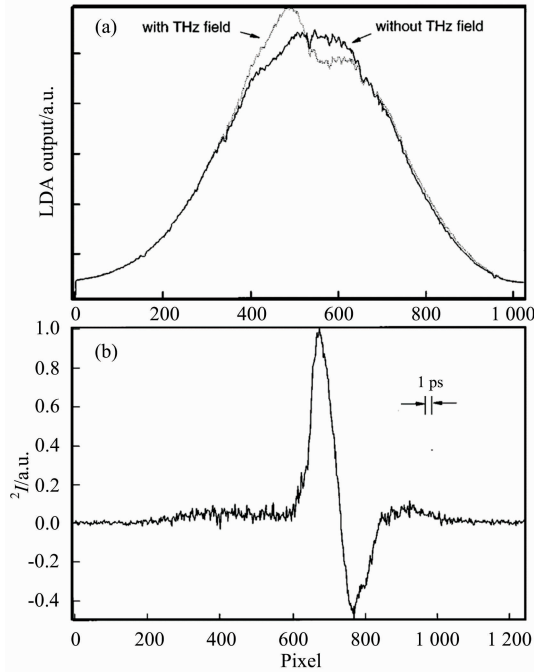


图 2 首次使用光谱编码技术测量的实验结果<sup>[13]</sup>

(a): 太赫兹脉冲调制前后的探测光光谱对比; (b): 根据探测光被调制前后的光谱变化提取的太赫兹时域信号

Fig. 2 The THz signals measured firstly by spectral-encoding technique<sup>[13]</sup>

(a): Probe spectrum modulated with (dashed line) and without (solid line) a THz pulse; (b): Differential probe spectrum

当经过起偏器后的啁啾探测脉冲与 THz 脉冲在电光晶体中传播时, 由于泡克尔斯效应, 啁啾脉冲被太赫兹脉冲电场调制。再经检偏器后, 假设探测脉冲和太赫兹脉冲同步, 啁啾探测脉冲电场可表示为<sup>[14]</sup>

$$E_m(t) = E_c(t) + kE_{\text{THz}}(t)E_c(t) = E_c(t) + E_s(t) \quad (9)$$

式(9)中,  $E_{\text{THz}}$ 是太赫兹波电场,  $k$ 是反应太赫兹电场强度的系数或调制常数。利用光谱仪测量啁啾探测脉冲的光谱分布, 探测信号对应光学频率  $\omega_1$ , 假设光谱仪的光谱分辨率足够高, 则光谱分辨率  $g(\omega_1 - \omega)$ 可表达为  $\delta$  函数。因此, 啁啾脉冲背景光谱  $I_b$  和被太赫兹电场调制后光谱  $I_m$  可表示为

$$I_b = \delta(\omega_1 - \omega) |E_c(\omega)|^2 = \int_{-\infty}^{\infty} \delta(\omega_1 - \omega) |E_c(\omega)|^2 d\omega = |E_c(\omega_1)|^2 \quad (10)$$

$$I_m = \delta(\omega_1 - \omega) |E_m(\omega)|^2 = \int_{-\infty}^{\infty} \delta(\omega_1 - \omega) |E_m(\omega)|^2 d\omega = |E_m(\omega_1)|^2 \quad (11)$$

从被调制光谱中去除背景光谱, 可得到变化光谱  $\Delta I$

$$\begin{aligned} \Delta I &= I_m - I_b = |E_m(\omega_1)|^2 - |E_c(\omega_1)|^2 \\ &= |E_c(\omega_1) + E_s(\omega_1)|^2 - |E_c(\omega_1)|^2 \\ &= E_c(\omega_1)E_s^*(\omega_1) + E_c^*(\omega_1)E_s(\omega_1) + |E_s(\omega_1)|^2 \end{aligned} \quad (12)$$

其中,

$$E_c(\omega_1) = \int_{-\infty}^{\infty} E_c(t) \exp(i\omega_1 t) dt$$

$$E_s(\omega_1) = \int_{-\infty}^{\infty} E_s(t) \exp(i\omega_1 t) dt$$

令  $S(\omega_1) = \Delta I = I_m - I_b$ , 根据  $T_0 = 2/\Delta\omega_0$  和  $2\alpha \approx \pm \Delta\omega_0/T_c$  可得出,  $\alpha \approx \pm (T_0 T_c)^{-1}$ 。在 CCD 像元上探测的瞬时频率  $\omega_1$  与时间  $t$  成正比, 因此可以通过  $S(\omega_1)$  的测量提取太赫兹信号, 根据坐标变换  $\omega_1 - \omega_0 = 2\alpha t'$ , 并考虑小振幅的太赫兹脉冲, 可忽略含  $k$  的二阶项, 太赫兹信号为<sup>[15]</sup>

$$S(t') \propto k\gamma f \left( \frac{t'}{T_0} \right) (-tT_z^{-1}) \exp[-(t^2 T_c^{-2}) \chi] \quad (13)$$

参数  $\chi$  是影响所测的太赫兹时域波形的主要因素<sup>[16]</sup>, 当  $\chi=1$  的条件严格满足时才有

$$S(t') \propto E_{\text{THz}}(t') \quad (14)$$

由此测得太赫兹时域信号能真实反映实际被测太赫兹脉冲时域波形。

光谱编码技术中光路布置简单, 信噪比较高, 测量结果直观, 可实时监控 THz 信号。但缺点是要满足较苛刻的条件, 所测信号才能真实反映原始太赫兹信号, 否则容易产生失真甚至严重畸变<sup>[16]</sup>。

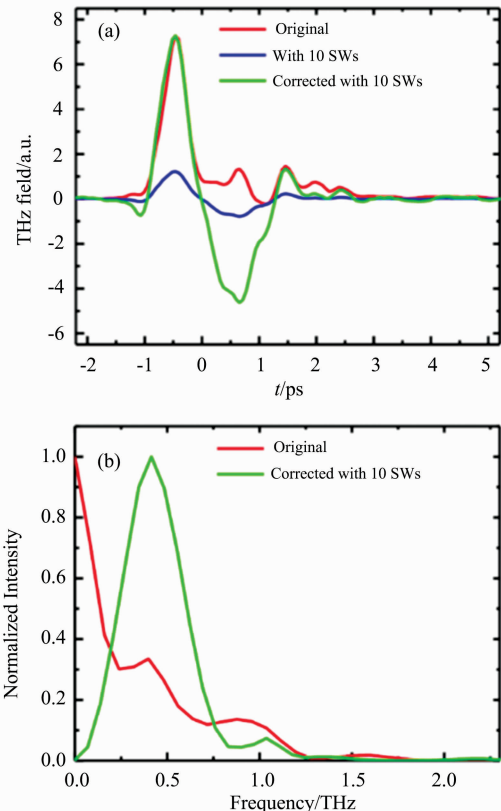


图 3 当太赫兹脉冲较强时利用光谱编码技术测得的严重失真的太赫兹信号(红)、衰减信号(蓝)和修正后的信号(绿)<sup>[17]</sup>

(a): 太赫兹时域信号; (b): 太赫兹频谱

Fig. 3 The significantly distorted (red), attenuated (blue), and corrected (green) THz signals measured with spectral-encoding technique in the case of strong THz pulse<sup>[17]</sup>

(a): Terahertz time domain signals; (b): THz spectra

光谱编码技术中的失真包括因探测脉冲宽度(或啁啾)未能匹配被测太赫兹脉冲宽度、被测太赫兹脉冲较强、探测脉冲的频谱较窄等因素导致的失真情形,其中前两种失真最为明显。图 3 红色图线就是在太赫兹脉冲较强的情况下测得的明显失真的太赫兹信号。

为了减小第一种失真,可使用色散玻璃代替光栅对,通过连续改变色散玻璃厚度优化啁啾探测脉冲宽度,即探测脉冲的时间窗口正好要能覆盖整个被测太赫兹脉冲,使其与被测太赫兹脉冲时间宽度相匹配<sup>[18]</sup>。为了减小第二种失真,可以使用在很宽的太赫兹频谱范围内具有平坦透费率的高阻硅片对较强的太赫兹脉冲衰减后再进行测量<sup>[17]</sup>。图 3 中的绿色图线就是利用这种方法修正后得到的太赫兹脉冲信号。

光谱编码技术另外一个缺点是时间分辨率较低。光谱编码技术的时间分辨率可表示为<sup>[12]</sup>:  $\delta T = \sqrt{T_0 T_c}$ , 可见探测脉冲的原始宽度  $T_0$  和啁啾探测脉冲宽度  $T_c$  越宽,时间分辨率越低。但对于一个确定的被测太赫兹脉冲,为了尽可能减小第一种失真,  $T_c$  必须与太赫兹脉冲时间宽度匹配,所以为了提高时间分辨率,只能减小  $T_0$ ,即可以使用脉宽更短(即带宽更宽)的飞秒脉冲光源作为探测光。

## 2.2 空间编码技术

为了克服光谱编码技术中时间分辨率低的缺点,人们提出了另一种单发 THz-TDS 技术,即空间编码技术(spatial-encoding technique)<sup>[19-20]</sup>。该技术中,探测光被太赫兹脉冲调制后,时域太赫兹波形被线性编码到探测光不同的空间位置,经过空间时间坐标变换可获得待测太赫兹脉冲的时域波形。

### 2.2.1 一维空间编码技术

2000 年,Shan 等<sup>[19]</sup>采用一维空间编码技术测量太赫兹时域波形。如图 4 所示,泵浦光产生的太赫兹波与探测光以一定夹角  $\alpha$  同步入射到电光晶体,在电光晶体表面相交,电光晶体交线上各点太赫兹脉冲与探测光之间的相对时间延迟沿该相交线变化,不同位置的探测光被不同时刻的太赫兹脉冲调制,经过相互正交的起偏器和检偏器以最大限度地提高探测信噪比<sup>[21]</sup>,并由 CCD 记录探测光的光强调制在空间上的分布。根据几何关系计算时间  $t$  和空间坐标  $x$ ,设太赫兹波束与探测光束夹角为  $\alpha$ ,可得出  $t = x \tan \alpha / c$ ,  $c$  为真空中的光速。时间窗口  $\Delta t$  是由探测光束宽度  $w$  和两束光夹角  $\alpha$  决定的,  $\Delta t = w \tan \alpha / c$ 。实验结果如图 5 所示。

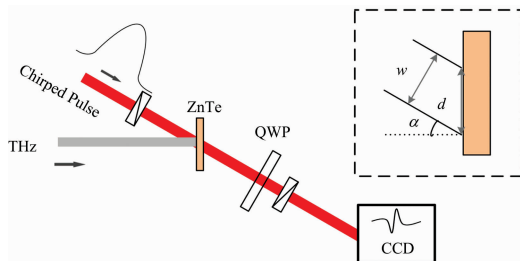


图 4 一维空间编码技术原理图

Fig. 4 Schematic diagram of one dimensional spatial-encoding technique

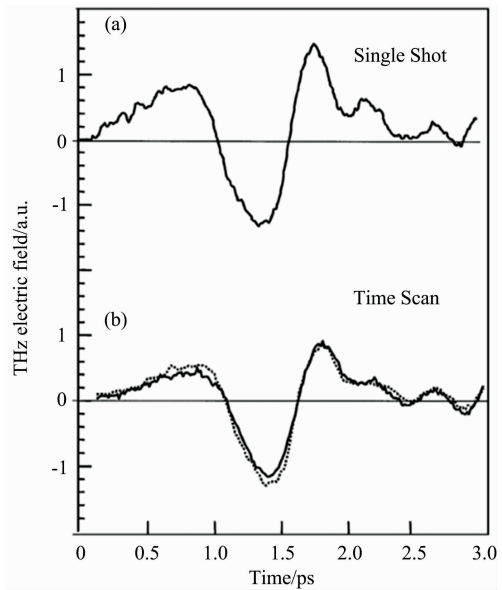


图 5 使用一维空间编码技术获取的太赫兹信号<sup>[19]</sup>

(a): 太赫兹时域信号; (b): 传统扫描方法经过多次平均提取的太赫兹时域信号数据(实线)与一维空间编码技术多次平均提取太赫兹时域信号(虚线)的对比

Fig. 5 THz pulses measured with one dimensional spatial-encoding technique<sup>[19]</sup>

(a): Terahertz time domain signal; (b): A THz waveform obtained by averaging of single-shot data (dotted curve), and a waveform measured with the conventional scanning method (solid curve)

在空间编码技术中,时间分辨率与两束光夹角和探测光束宽度有关。由于探测光与太赫兹波是非共线通过探测晶体,因此光电检测效率较低。

2008 年 Yoichi 等<sup>[22]</sup>基于一维空间编码技术,通过波前倾斜法(pulse-front tilting),利用色散棱镜把探测光展开为线性空间分布,而后与太赫兹脉冲共线经过电光晶体,利用光强调制方法来提取时域波形。但时间窗口只有几个皮秒,随后该小组利用透射光栅元件波前倾斜技术把时间窗口扩展到 20 ps<sup>[23]</sup>,与太赫兹脉冲共线入射电光晶体。其测量结果与传统电光取样技术结果相符,并测得乳糖样品在太赫兹波段信息,如图 6 所示。

在一维空间编码技术中,太赫兹光束并没有聚焦,不仅需要太赫兹波和探测光强分布均匀,而且需要太赫兹光束和探测光都有足够的强度。

### 2.2.2 二维空间编码技术

为了提高单发探测技术的时间分辨率,2007 年 Kim 等<sup>[20]</sup>提出二维空间编码技术,即在探测光路中加入两个相互正交的透射式阶梯形镜(图 7 所示)来实现二维空间编码。经过一对阶梯镜后,探测光在空间上分离成均匀的许多不同延时子光束阵列(分割成 400 个区域),与太赫兹脉冲同步聚焦在电光晶体上,探测脉冲不同时间子光束分别被太赫兹光束中不同空间小区域的电场调制,在二维 CCD 阵列不同区域显示其探测光强度调制,从而获得被测太赫兹脉冲时域波形。原理如图 8 所示。

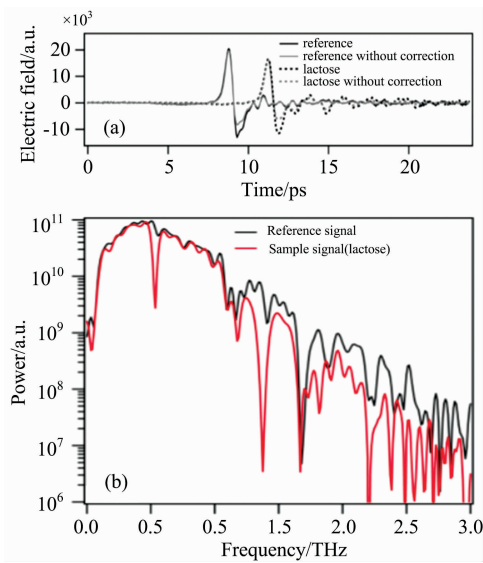


图 6 一维空间编码波前倾斜法实验结果<sup>[23]</sup>

Fig. 6 THz signals measured by one dimensional spatial-encoding technique using pulse-front tilting method<sup>[23]</sup>

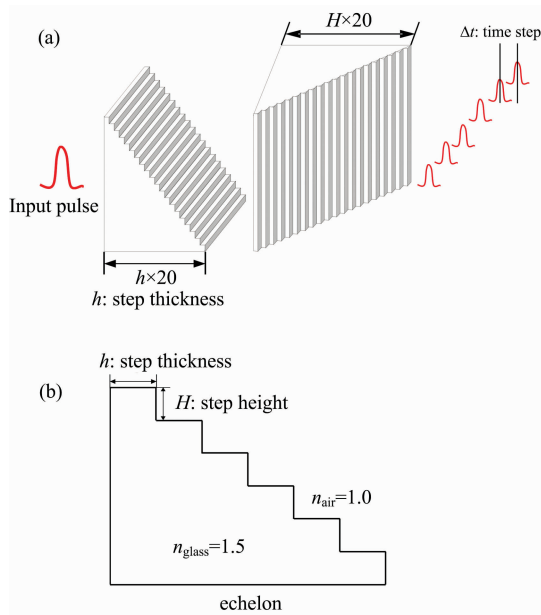


图 7 (a) 透射式双阶梯镜结构图, 将激光脉冲分成许多延迟递增子光束; (b) 阶梯镜结构参数图

Fig. 7 (a) Schematic of transmissive dual echelon optics capable of splitting an incoming single laser pulse into many incrementally delayed beamlets; (b) Structure parameters of echelon optics

该技术中, 由于每一个子光束的瑞利范围都大于晶体厚度, 所以子光束以不同角度入射到电光晶体产生的信号强度变化可以被忽略。探测光经过一对正交放置的阶梯镜, 会分割出许多具有递增时间延迟的子光束(结构如图 7 所示), 子光束在阶梯镜中的光程越长, 时间延迟就越大。设阶梯镜一个小台阶厚度参数为  $h$ , 高度参数为  $H$ , 其中需要满足  $H$

$=mh$ ,  $m$  是阶梯镜台阶个数。时间窗口也就是整个时间延迟为  $mH\Delta n/c$ 。探测光束经过这对阶梯镜后每相邻两个子光束依次具有相同时间延时  $\Delta t$ , 即时间分辨率为  $\Delta t = h\Delta n/c$ ,  $c$  为在真空中光速,  $\Delta n$  是折射率之差。在参考文献<sup>[20]</sup>中,  $\Delta n = n_{\text{glass}} - n_{\text{air}} \approx 0.5$ , 阶梯镜中每个台阶厚度  $h$  为  $15 \mu\text{m}$ , 台阶高度  $H$  为  $300 \mu\text{m}$ , 每个阶梯镜台阶数为 20 个, 因此时间分辨率为  $\sim 25 \text{ fs}$ , 时间窗口是  $\sim 10 \text{ ps}$ 。使用二维空间编码技术获得的太赫兹时域信号和使用扫描 EOS 技术测得的结果如图 9 所示。

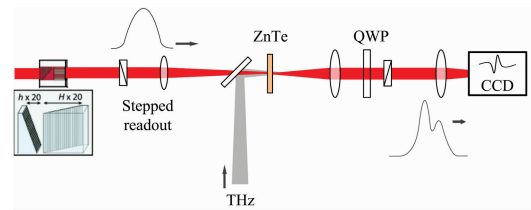


图 8 二维空间编码技术原理图

Fig. 8 Schematic diagram of two dimensional spatial-encoding technique

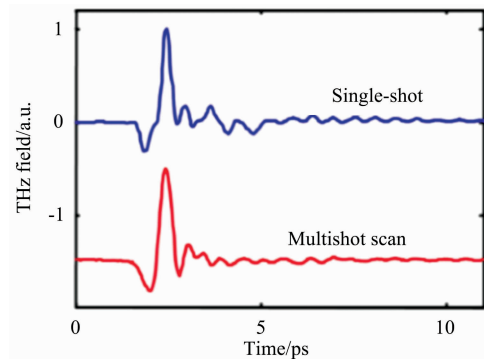


图 9 二维空间编码(蓝线)与扫描电光采样技术(红线)测量结果的对比<sup>[20]</sup>

Fig. 9 Comparison of THz waveforms obtained with two dimensional spatial-encoding technique (blue line) and scanning technique of EOS (red line)<sup>[20]</sup>

二维空间编码技术相对容易获得较高时间分辨率(取决于小台阶厚度)和足够长的探测时间窗口(取决于阶梯镜的总高度), 同时不需要高分辨率光谱仪、非共线结构或更复杂的非线性光学探测。缺点是这种技术中探测光束和太赫兹光束能量的分割导致这种方法的测量信噪比较低, 待测太赫兹光束需要有足够的强度且空间上分布均匀。此外, 这种技术对阶梯镜加工精度要求较高, 否则不易分辨每个子光束光强变化和进行算法解码来提取太赫兹时域信号。由于受加工工艺水平和材质光学质量的限制, 目前这种光学元件加工均匀性、平整度以及材料杂质等因素都会影响所测太赫兹时域波形。

### 2.3 互相关技术

为了解决光谱编码技术中时间分辨率较低的问题, 有人提出了光路布置相对复杂的单发 THz-TDS 技术, 即互相关技术<sup>[24-25]</sup>。该技术中, 啁啾脉冲经过太赫兹脉冲调制后, 再

与短脉冲相互作用,从而得到太赫兹脉冲时域波形。

### 2.3.1 非共线互相关技术

2003年, Jamison 等<sup>[26]</sup>提出非共线互相关单发测量技术。该技术结合了光谱编码和空间编码方法,需要三束激光:一束用于泵浦太赫兹源,一束展宽成啁啾脉冲在电光晶体处被太赫兹脉冲调制后与第三束超短脉冲激光以角度  $2\phi$  进入非线性晶体倍频产生二次谐波,其原理如图 10 所示。该技术中泵浦光与另一束短脉冲脉宽都是几十飞秒,啁啾脉冲脉宽在皮秒量级。通过 CCD 探测二次谐波空间分布,再经过空间-时间坐标变换获得待测太赫兹脉冲的时域波形。

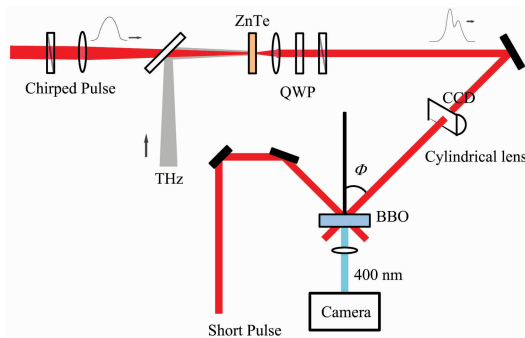


图 10 非共线互相关技术原理图

Fig. 10 Schematic diagram of non-collinear cross-correlation technique

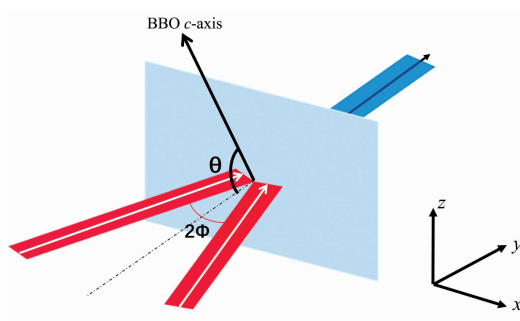


图 11 产生二次谐波原理图

Fig. 11 Schematic diagram of second harmonic generation

这种非共线的二次谐波互相关技术最初应用于自相关仪,用于测量超快激光脉冲脉宽<sup>[27]</sup>,其产生二次谐波自相关原理如图 11 所示,进入 BBO 晶体的短脉冲光束直径为  $d$ ,夹角  $2\phi$ ,它的时间窗口  $t = 2d\sin\phi/c$ ,其中  $c$  是真空中光速。二次谐波空间分布可以反映基波的时间分布,所对应的时间窗口可由短脉冲光束直径  $d$  及夹角  $\phi$  决定。为了增加测量时间窗口,可以对脉冲扩束,或者增大两束脉冲间夹角。激光扩束将导致二次谐波信号减弱,而改变两束脉冲间夹角需要变化 BBO 晶向来满足相位匹配条件。为了使入射到 BBO 晶体上的激光能量更集中从而提高二次谐波的强度,可利用柱面镜圆光斑转换成线光斑,即把光束展开成线性空间分布。使用该技术测量的结果如图 12 所示。

二次谐波互相关技术可明显提高时间分辨率,但需要两束探测激光,光路布置复杂,不能直观实时监测,同时由于

时域信号的提取是通过空间编码实现的,短脉冲与啁啾脉冲探测光束的光强需要尽量均匀分布以减小畸变。由于探测器测量的互相关信号为  $S(x) \propto \int_{-\infty}^{\infty} I_{ch}(\tau)I_r(t+\tau)d\tau$ ,  $I_{ch}$  和  $I_r$  分别是啁啾脉冲和短脉冲光强,因此,为了得到足够强的信号,该方法需要足够强的探测光。

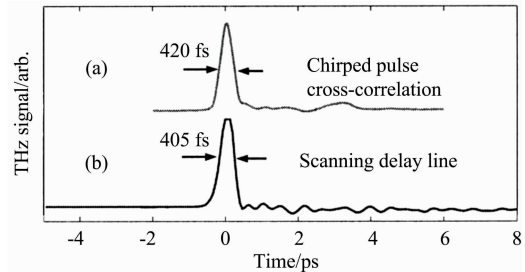


图 12 (a)使用二次谐波互相关技术测量的太赫兹脉冲时域信号;(b)利用扫描光电光取样技术测量的太赫兹脉冲时域信号<sup>[26]</sup>

Fig. 12 (a) THz temporal waveforms measured with non-collinear cross-correlation technique versus; (b) THz temporal waveforms measured with scanning EOS<sup>[26]</sup>

### 2.3.2 共线互相关技术

考虑到非共线互相关技术信号较弱, Matlis 等提出一种共线互相关技术即时域电场互相关技术<sup>[25]</sup>,该技术中将被太赫兹电场调制的啁啾脉冲与短探测脉冲共线入射到光谱仪,然后从干涉条纹中提取太赫兹信号。该技术示意图如图 13 所示。

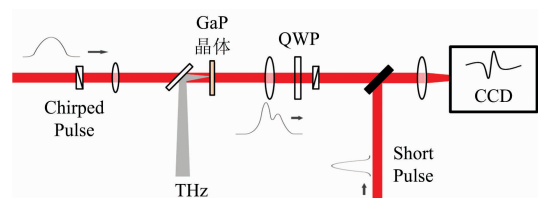


图 13 共线互相关技术原理图

Fig. 13 Schematic diagram of collinear cross-correlation technique

该技术中,太赫兹电场对啁啾脉冲的振幅或相位进行编码,然后通过数据还原计算提取太赫兹信号。选取振幅编码还是相位编码方式主要取决于探测光入射的偏振态。提取太赫兹时域波形需要分为两步:第一步是获得探测脉冲光束的空间时域电场,  $E_{THz}(y, t) \equiv \epsilon(y, t)\exp\{i\Phi(y, t)\}$ , 这里  $\epsilon(y, t)$  和  $\Phi(y, t)$  是探测脉冲的时域强度和相位;第二步是提取太赫兹脉冲空间时域波形  $E_{THz}(y, t)$ , 通过太赫兹调制探测光的光强和相位进行编码<sup>[25]</sup>。利用共线互相关技术测量的结果图如 14 所示。

相位编码光谱干涉法利用单个啁啾脉冲,然后通过相位调制,(同时也需要测量参考相位),在电光晶体中可以探测到较大的相位变化,相位编码更适合测量较强的太赫兹电场<sup>[28]</sup>。参考文献[25]中所描述的振幅和相位编码光谱干涉技术时间分辨率高,因为是共线探测其信噪比较非共线情形

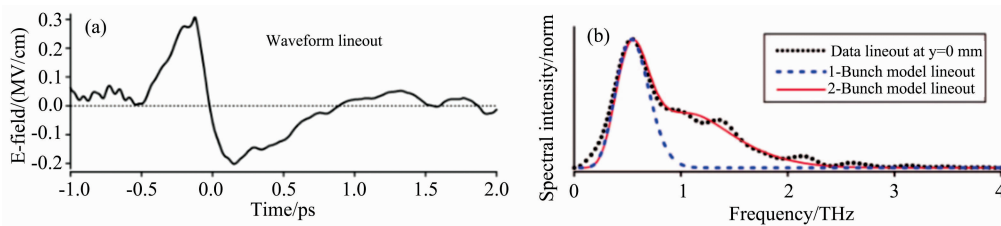


图 14 (a)使用共线互相关技术振幅编码探测时域光谱; (b)经过傅里叶变化得到的频谱<sup>[25]</sup>

Fig. 14 (a) THz temporal waveforms measured with collinear cross-correlation technique; (b) Fourier transformed spectrum of THz waveform<sup>[25]</sup>

要高,但光路布置较为复杂,不能直观实时监测,需要进行数据还原计算。

### 3 结 论

回顾了目前比较成熟的几种单发 THz-TDS 测量技术,介绍了这几种探测技术的原理和实测结果。每种技术都有自己的优势和不足,可概括比较如表 1 所示。

表 1 单发 THz-TDS 探测技术优势和不足

Table 1 The advantages and disadvantages of single-shot THz-TDS detection techniques

单发技术	优势	不足
光谱编码技术	光路布置简单,测量结果直观,可实时监测,信噪比较高	时间分辨率低,需满足较严苛的条件,否则容易产生信号失真
一维空间编码技术	光路布置简单,时间分辨率高	需要较强的太赫兹波束与探测光光束且强度需分布均匀否则易产生信号畸变,不能实时监测
二维空间编码技术	时间分辨率高	光路布置较复杂,被测太赫兹光束需有足够强度且空间上分布均匀,对阶梯镜加工精度和材质的光学质量要求较高,不能实时监测,信噪比较低
非共线互相关技术	时间分辨率高	需要两路探测光束,光路布置复杂,对探测光和太赫兹光束强度和光束质量要求较高,不能实时监测,信噪比较低
共线互相关技术	时间分辨率高,信噪比较高	需要两路探测光束,光路布置复杂,不能实时监测

在上述所有单发 THz-TDS 测量技术中,虽然原则上只需要测量一次待测太赫兹脉冲电场调制过的某种信号,但实际上都需要测量一次没有太赫兹脉冲电场调制的参考信号,两者相减才能从中提取被测太赫兹脉冲信号。对于一些不可逆过程中的时域光谱测量,要真正实现完全意义上的“单发测量”,上述单发测量技术仍需要加以改进。例如,上述单发测量技术需要在光谱仪或 CCD 中扣除背景光谱或背景光强来得到太赫兹信号,因此为了实现严格意义上的单发探测,至少需要双通道(或者多通道探测光路),即将同一发探测光

束分为两路:一路用于测量背景信号或参考信号,一路用于测量被太赫兹脉冲电场调制的信号。最近已有人尝试使用双通道探测光路来实现完全意义上的单发探测,如 2017 年 Russell 等受 Minami 等启发<sup>[29]</sup>,利用一个反射阶梯镜,对探测光进行二维空间编码,使用双通道探测方法实现了完全意义上的单发 THz-TDS 探测<sup>[30]</sup>,如图 15 所示。

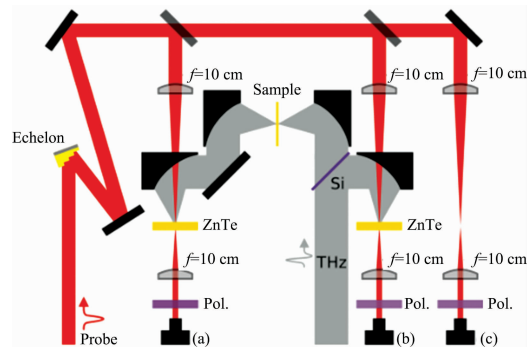


图 15 双通道单发 THz-TDS 探测实验示意图<sup>[30]</sup>

太赫兹脉冲被硅片分开两束,一束探测样品透射,另一束作为参考;探测光束被阶梯镜展开

(a): 探测太赫兹波形通道; (b): 参考太赫兹波形通道; (c): 探测光背景信号

Fig. 15 Schematic diagram of two-channel single-shot THz-TDS detection<sup>[30]</sup>

The THz pulse was split into two arms by silicon film, one probed the sample in transmission mode while the other served as a reference. The probe was split by the reflection echelon. Two of the arms measured (a) probing and (b) reference THz waveforms. The remaining arm (c) measured the background probe waveform

使用双通道探测光路的方法虽然可以实现真正意义上只用一束探测脉冲单发探测太赫兹时域光谱信号,但需要严格调试和校对两路探测光路的接收器参数,以免引入误差。由于增加了探测光路和探测器件,不可避免地增加了整个探测系统的光路复杂性和费用,同时也加大了调试光路的困难。

从实际应用角度看,低重复频率太赫兹脉冲辐射情形中较适合采用单通道探测光路的单发 THz-TDS 测量技术,而不可逆过程情况下只能采用双通道(或多通道)探测光路的单发 THz-TDS 技术。可以相信,随着探测技术的不断发展,单发 THz-TDS 技术也会得到进一步发展和完善,为拓展太赫兹波的广泛应用提供有力的工具。

## References

- [ 1 ] Jepsen P U, Cooke D G, Koch M. *Laser & Photonics Reviews*, 2011, 5(1): 124.
- [ 2 ] Dandolo C, Guillet J P, Ma X, et al. *Optics Express*, 2018, 26(5): 5358.
- [ 3 ] Joshi N, Pathak N P. *Photonics and Nanostructures-Fundamentals and Applications*, 2018, 28: 1.
- [ 4 ] Ergün S, Sönmez S. *Journal of Military & Information Science*, 2015, 3(1): 13.
- [ 5 ] Caumes J P, Younus A, Salort S, et al. *Appl. Opt.*, 2011, 50(20): 3604.
- [ 6 ] Wang F, Zhao D, Dong H, et al. *Spectrochimica Acta Part A Molecular & Biomolecular Spectroscopy*, 2017, 179: 255.
- [ 7 ] YU Dao-yin, TAN Heng-ying(郁道银, 谈恒英). *Engineering Optics(工程光学)*. Beijing: China Machine Press(北京: 机械工业出版社), 2012.
- [ 8 ] Saleh B E A, Teich M C. *Fundamentals of Photonics*. John Wiley & Sons, New York, 1991.
- [ 9 ] Ilyakov I E, Kitaeva G K, Shishkin B V, et al. *Optics Letters*, 2017, 42(9): 1704.
- [ 10 ] Teo S M, Ofori-Okai B K, Werley C A, et al. *Review of Scientific Instruments*, 2015, 86(5): 051301.
- [ 11 ] DONG Jia-meng, PENG Xiao-yu, MA Xiao-hui, et al(董家蒙, 彭晓昱, 马晓辉, 等). *Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析)*, 2016, 36(5): 1277.
- [ 12 ] XU Jing-zhou, ZHANG Xi-cheng(许景周, 张希成). *Introduction to THz Wave Photonics(太赫兹科学技术和应用)*. Beijing: Peking University Press(北京: 北京大学出版社), 2007. 77.
- [ 13 ] Jiang Z P, Zhang X C. *Applied Physics Letters*, 1998, 72(16): 1945.
- [ 14 ] Yellampalle B, Kim K Y, Rodriguez G, et al. *Optics Express*, 2007, 15(3): 1376.
- [ 15 ] Peng X Y, Willi O, Chen M, et al. *Optics Express*, 2008, 16(16): 12342.
- [ 16 ] Peng X Y, Teng J H, Zhang X H, et al. *Journal of Applied Physics*, 2010, 108(9): 093112.
- [ 17 ] Peng X Y, Teng J H, Liu H W, et al. *Journal of Physics D-Applied Physics*, 2016, 49(1): 015501.
- [ 18 ] Peng X Y, Zhang X H, Teng J H, et al. *Applied Physics Letters*, 2011, 98(23): 231111.
- [ 19 ] Shan J, Weling A S, Knoesel E, et al. *Optics Letters*, 2000, 25(6): 426.
- [ 20 ] Kim K Y, Yellampalle B, Taylor A J, et al. *Optics Letters*, 2007, 32(14): 1968.
- [ 21 ] Jiang Z P, Sun F G, Chen Q, et al. *Applied Physics Letters*, 1999, 74(9): 1191.
- [ 22 ] Kawada Y, Yasuda T, Takahashi H, et al. *Optics Letters*, 2008, 33(2): 180.
- [ 23 ] Kawada Y, Yasuda T, Nakanishi A, et al. *Optics Express*, 2011, 19(12): 11228.
- [ 24 ] Van Tilborg J, Schroeder C B, Toth C, et al. *Optics Letters*, 2007, 32(3): 313.
- [ 25 ] Matlis N H, Plateau G R, Van Tilborg J, et al. *Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics*, 2011, 28(1): 23.
- [ 26 ] Jamison S P, Shen J L, Macleod A M, et al. *Optics Letters*, 2003, 28(18): 1710.
- [ 27 ] Salin F, Georges P, Roger G, et al. *Applied Optics*, 1987, 26(21): 4528.
- [ 28 ] Sharma G, Singh K, Al-Naib I, et al. *Optics Letters*, 2012, 37(20): 4338.
- [ 29 ] Minami Y, Hayashi Y, Takeda J, et al. *Applied Physics Letters*, 2013, 103(5): 051103.
- [ 30 ] Russell B K, Ofori-Okai B K, Chen Z J, et al. *Optics Express*, 2017, 25(14): 16140.

## Single-Shot Terahertz Time Domain Spectroscopy Techniques

ZHANG Dong-yu<sup>1, 2</sup>, PENG Xiao-yu<sup>1\*</sup>, TANG Fu<sup>1</sup>, DU Hai-wei<sup>1</sup>, LUO Chun-hua<sup>2\*</sup>

1. Chongqing Institute of Green and Intelligent Technology, Chinese Academy of Sciences, Research Center for Terahertz Technology, Chongqing 400714, China
2. The School of Photo-Electronic, Changchun University of Science and Technology, Changchun 130022, China

**Abstract** Terahertz time-domain spectroscopy (THz-TDS) is widely used in materials, biomedicine, chemistry, pharmacy, security and other fields. Traditional scanning THz-TDS technologies need to scan point by point by changing the time delay between the probe pulse and the THz pulse so as to reconstruct the time domain signals, only suitable for sample detection in THz radiation source with high repetition rate and high stability. However, in the cases of THz radiation source with low repetition rate, large fluctuation, or in irreversible processes, scanning THz-TDS detection technique is not applicable. In these cases, single-shot THz-TDS techniques are desirable. In principle, single-shot THz-TDS technologies require only one shot probe laser pulse to obtain a complete THz temporal waveform. In this article, the main detection techniques in single-shot THz-TDS are introduced. These techniques utilize the Pockel effect of the electro-optic crystal to retrieve the terahertz signal by measuring a



physical quantity change of the probe pulse. According to the different single-shot methods, these techniques may be classified into the spectral-encoding technique, spatial-encoding technique and cross-correlation technique. In spectral-encoding technique, different frequency components of probe pulse are separated in time, and different temporal components are modulated by electric fields at different times of THz pulse. The THz waveform can be extracted from the difference between the spectral distributions of the probe pulse with and without THz pulse modulation. This technique has shown its advantages with simple optical path, visual measurement results and high signal-to-noise ratio (SNR), but also shown its disadvantages with low time resolution and distortion of the measured THz signals. In order to improve the time resolution, the spatial-encoding technique was proposed. In this technique, different positions of probe pulse are modulated by electric fields at different times of THz pulse. The THz waveform can be retrieved by measuring the difference between intensity of the probe pulse with and without THz pulse modulation. There are two methods of this technique: one-dimensional spatial-encoding and two-dimensional spatial-encoding technique. Although the technique has shown high time resolution, the SNR of detected signal is relatively low because of the dispersive energy of the probe beam. Another technique to improve the time resolution is cross-correlation technique, which can be classified into the collinear cross-correlation and non-collinear cross-correlation technique. In the non-collinear cross-correlation technique, the second-harmonic generation from the cross-correlation between the short readout probe pulse and the chirped probe pulse is modulated by the terahertz pulse. The THz waveform can be extracted from the difference between the second-harmonic distribution with and without THz pulse modulation. In the collinear cross-correlation technique, the chirped probe pulse is modulated by the THz pulse and a short readout probe pulse with collinear incidence to the spectrometer. The THz waveform can be extracted from the difference between the interference fringes with and without THz pulse modulation. The method has shown high time resolution and SNR, but the optical path is complex, and the signal cannot be real-time monitored. In this article, the development of the above mentioned main single-shot THz-TDS detection techniques are introduced. The principles, the application and some measurement results of these techniques are reviewed in detail. The advantages and disadvantages of them are also discussed.

**Keywords** THz time domain spectroscopy technique; Single-shot THz time domain spectroscopy technique; Electro-optic effect

(Received Feb. 13, 2018; accepted Jun. 16, 2018)

\* Corresponding authors