

文章编号: 1672-8785(2024)08-0033-08

激光二次谐波在太赫兹液体相干探测技术中的作用与影响

王婧仪¹ 杜海伟^{1,2*}

(1. 南昌航空大学测试与光电工程学院, 江西 南昌 330063;

2. 无损检测技术教育部重点实验室, 江西 南昌 330063)

摘 要: 太赫兹空气相干探测技术是太赫兹领域一项重要的探测技术。利用液体水(或其他液体)为作用介质, 可以对该技术进行改进。介绍了太赫兹液体相干探测技术的基本原理, 详细分析了该技术中激光二次谐波的作用及其强度对探测结果的影响, 即强度不同时太赫兹电场与强度信号不同比值下探测结果在时域和频域的特点和性质; 分析了激光二次谐波强度不同时该技术从非相干到相干性的演化规律、探测激光能量和介质非线性系数对相干性的影响; 探讨了固体材料在该技术中的使用, 比较了气体、液体与固体材料在该技术中对产生激光二次谐波和探测结果的影响。该研究对理解和使用基于液体的太赫兹宽带相干探测技术有一定的帮助。

关键词: 太赫兹; 相干探测; 液体; 二次谐波

中图分类号: O433.4 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3969/j.issn.1672-8785.2024.08.005

The Role and Influence of Laser Second Harmonic in the Terahertz Liquid Coherent Detection Technology

WANG Jing-yi¹, DU Hai-wei^{1,2*}

(1. College of Measuring and Optical Engineering, Nanchang Hangkong University, Nanchang 330063, China;

2. Key Laboratory of Nondestructive Testing (Ministry of Education), Nanchang 330063, China)

Abstract: Terahertz air-based coherent detection technology is an important detection method in the field of terahertz. By using liquid water (or other liquids) as the interaction medium, this detection technology can be improved. The basic principle of this detection technology is introduced, and the effect of laser second harmonic and its intensity on the detection results are analyzed in detail. The characteristics and properties of the detection results in the time and frequency domains under different ratios of terahertz electric field and intensity signal at different intensities are analyzed. The evolution law of the technology from incoherence to coherence at different laser second harmonic intensities is analyzed, as well as the influence of the intensity of the probe and the nonlinear coefficient of medium on the detection. The application of solid-state materials in this tech-

收稿日期: 2024-02-05

基金项目: 国家自然科学基金项目(12064028); 江西省自然科学基金项目(20232BAB201045); 南昌航空大学研究生创新专项(YC2023-040)

作者简介: 王婧仪(2000-), 女, 河北石家庄人, 硕士研究生, 主要研究方向为太赫兹技术与应用。

*通讯作者: E-mail: haiweidu@nchu.edu.cn

nology is discussed. The effects of gas, liquid, and solid-state materials on the generation of second harmonics and detection results are compared in this technology. The research results are helpful for understanding and using liquid-based terahertz broadband coherent detection technology.

Key words: terahertz; coherent detection; liquid; second harmonic

0 引言

太赫兹波通常指频率在 0.1~10 THz 范围内的电磁波, 波长介于毫米波与亚毫米波之间。宽带太赫兹辐射具有频率高、穿透性好、光子能量低等特点, 能够通过光谱学分析识别多种物质成分, 在国防安全、航空航天、无损检测与生物成像、光谱分析等方面应用广泛^[1-3]。宽带太赫兹波的相干探测技术可以同时测量太赫兹脉冲的幅度和波形, 获得脉冲的相位信息, 是其应用的基础。

常用的太赫兹相干探测技术包括以半导体为介质的光导体天线(Photoconductor Antenna, PCA)和自由空间电光取样(Electro-Optic Sampling, EOS)技术^[4]。二者能够以较低探测激光能量进行相干探测, 可用于振荡级和放大级飞秒激光系统。这两种方法受到介质性质(如载流子的非瞬时响应、声子吸收)等因素的影响, 其探测带宽难以覆盖整个太赫兹波段。

以空气(或气体)为探测介质的空气相干探测技术(Air-Biased-Coherent-Detection, ABCD)^[5-6]和光场偏置相干探测技术(Optical-Biased-Coherent-Detection, OBCD)^[7-8]充分利用太赫兹电场和探测激光脉冲在气体中的四波混频作用产生激光二次谐波来获得太赫兹电场信息。由于气体介质对太赫兹波的吸收可以忽略, 而且气体具有色散较小的特点, 这两种方法可以实现非常宽的太赫兹脉冲的相干探测。但是由于气体非线性系数较小, 通常需要探测激光脉冲能量为百微焦量级, 因此常用于放大级飞秒激光系统。

由于水对太赫兹波存在强烈吸收, 以液体为作用介质的太赫兹相干探测方法一直被认为是不可可能的。但是近年来, 出现了通过飞秒激光脉冲电离液体介质产生宽带太赫兹脉冲的方

法^[11]。这为利用液体进行太赫兹相干探测的发展提供了新的思路。以此为基础, Tan Y 等人于 2022 年首次实现了基于液态水的宽带太赫兹脉冲的相干探测^[12], 得到了频率范围为 0.1~18 THz 的太赫兹时域波形。这种探测方法的原理与空气相干探测方法相似, 但是需要探测激光脉冲通过 I 型 β 相偏硼酸钡(β -BBO)晶体进行倍频。这束倍频光为受控的二次谐波(Controlled Second-Harmonic, CSH)。而后探测激光与太赫兹波共同聚焦在一片自由流动的薄水膜上, 在水中产生激光二次谐波。通过带通滤波器过滤基频光, 使用光电倍增管(Photomultiplier Tube, PMT)测量从水中产生的激光二次谐波。测得的二次谐波是 CSH 与太赫兹电场诱导的二次谐波(Terahertz-Field-Induced-Second-Harmonic, TFISH)的混合信号。

基于液体的宽带太赫兹波相干探测技术在太赫兹测量方面具有明显优势, 探测激光需要微焦量级能量, 测量范围更宽, 是 ABCD 的改进措施, 因此能够用于较低能量的飞秒激光系统。本文介绍了基于液体水的宽带太赫兹脉冲探测的基本原理和实验光路, 结合数值计算分析了该技术中激光二次谐波的作用及其对探测的影响, 包括激光二次谐波光强在不同状况下时该探测技术从非相干性到相干性的表现和规律, 并定性比较了气体、液体和固体材料在宽带太赫兹探测中的性能, 从而为后续推广液体探测太赫兹波、评估该技术的探测性能等提供了很好的参考。

1 激光二次谐波在太赫兹液体相干探测技术中的作用

下面基于四波混频基本理论介绍太赫兹液体相干探测技术原理及激光二次谐波在该技术

中的作用。与太赫兹空气相干探测方法相似, 由于液体具有比空气更高的三阶非线性系数, 在液体介质中出现四波混频现象所需的激光能量较低, 因此该技术具有一定优势。

太赫兹液体相干探测技术是在液体水膜(或特殊溶液)中采用太赫兹电场与探测激光共同诱导产生激光二次谐波 E_{TFISH} , 并在探测光路中加入 BBO 晶体进行倍频以产生可控的激光二次谐波 E_{CSH} ; 通过斩波器调制太赫兹重复频率(通常放置在泵浦光路中调制泵浦激光来实现对太赫兹的调制)作为锁相放大器的参考频率, 从而使得该技术变为相干探测^[13]。

实验光路如图 1 所示, 利用中间打孔的离轴抛物面镜使太赫兹波束和探测激光共线入射到液体水膜(厚度约为 90 μm), 产生激光二次谐波。使用带通滤波片过滤激光基频光、透射二次谐波, 最后经过 PMT 探测激光二次谐波能量, 将其转换为电信号并输出给锁相放大器输入端。该过程涉及探测激光脉冲电场、太赫兹脉冲电场和液体水膜之间的相互作用。由四波混频理论可知, 太赫兹电场与探测激光电场 E_ω 共同作用产生的激光二次谐波为^[14]

$$E_{TFISH}(t_0) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \chi^{(3)} E_{THz}(t) E_\omega^2(t - t_0) dt \quad (1)$$

式中, $\chi^{(3)}$ 是作用介质的三阶非线性系数, t_0 为太赫兹脉冲与探测激光脉冲之间的时间延迟。当 E_{TFISH} 脉冲与 E_{CSH} 脉冲偏振方向相同、

同时传播到光电倍增管时, 光电倍增管接收到的光电信号可表示为

$$\begin{aligned} S_{2\omega}(t_0) &\propto \int_{-\infty}^{+\infty} |E_{TFISH} + E_{CSH}|^2 dt \\ &\propto \int_{-\infty}^{+\infty} E_{CSH}(t - t_0) E_{CSH}^*(t - t_0) dt \\ &\quad + 2\text{Re} \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} \chi^{(3)} E_\omega^2(t - t_0) E_{THz}(t) \right. \\ &\quad \left. \times E_{CSH}^*(t - t_0) \cos \phi dt \right\} \\ &\quad + \int_{-\infty}^{+\infty} |\chi^{(3)} E_\omega^2(t - t_0) E_{THz}(t)|^2 dt \quad (2) \end{aligned}$$

式中, 第一项为常数项 E_{CSH} , 即由探测光路中的 BBO 晶体进行倍频产生的激光二次谐波; 第二项为 E_{TFISH} 与 E_{CSH} 的相干项, 相干合成的结果与二者的相位差 ϕ 有密切关系; 第三项为非相干检测项, 由太赫兹电场与探测激光电场四波混频作用共同产生。通过在太赫兹光路中使用斩波器调制太赫兹脉冲重复频率来进行外差探测, 使得锁相放大器输出第二项和第三项。因此该信号实际包含了太赫兹电场信息和强度信息, 并非严格意义的相干探测, 其非相干性到相干性的过渡将在后文详细讨论。

由于基频光和倍频光脉宽为飞秒量级, 远小于光电探测器的积分时间, 可认为式(2)中对时间的积分由其峰值直接决定。令激光二次谐波 E_{CSH} 为 A 、 E_{TFISH} 为 B , 则锁相放大器输出端的信号可化简为

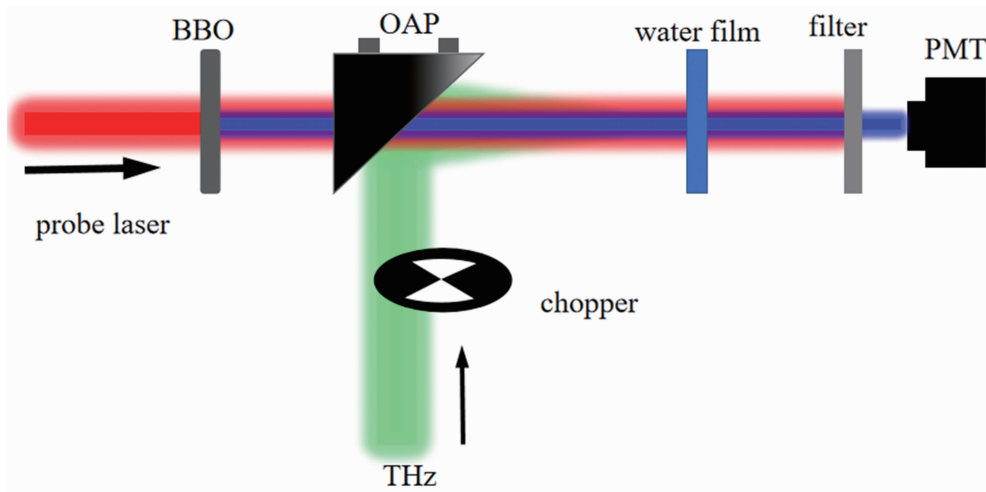


图 1 太赫兹液体相干探测原理图

$$S_{lock-in}(t_0) \propto \underbrace{2E_{CSH} \cdot \chi^{(3)} E_{\omega} E_{\omega} E_{THz}(t_0)}_{2AB} \cdot \cos\phi + \underbrace{[\chi^{(3)} E_{\omega} E_{\omega} E_{THz}(t_0)]^2}_{B^2} \quad (3)$$

因此, 由锁相放大器获得的信号包含太赫兹电场时域信号和强度时域信号。式中, E_{CSH} 大小由探测光路中的 BBO 晶体厚度和晶体非线性系数、探测激光脉宽和聚焦光强等状况共同决定, E_{TFISH} 由太赫兹电场、探测激光电场和探测介质的非线性系数共同决定。因此可通过改变上述条件对 E_{CSH} 和 E_{TFISH} 的大小进行调整, 从而改变 A/B 的值, 使得锁相放大器输出信号中太赫兹电场和强度的含量发生变化。利用基频光和倍频光在空气中传播速度的不同, 通过移动 BBO 晶体在探测光路中的位置来控制 E_{CSH} 与 E_{TFISH} 之间的相位差^[12]。

在太赫兹液体探测技术中, 需要探测激光、太赫兹电场的四波混频作用产生激光二次谐波, 也需要探测光经 BBO 晶体产生激光二次谐波, 二者相干叠加并结合斩波器对探测光路进行调制, 以完成对太赫兹辐射信息的差分探测。

2 探测的相干性分析

为了进一步分析基于液体的太赫兹相干探测技术的相干性特征, 下面结合数值计算分析其具体表现。待探测的初始太赫兹脉冲时域波形表示为

$$E_{THz}(t) = -\frac{t}{T_0} \exp(-\frac{t^2}{T_0^2}) \quad (3)$$

式中, T_0 为表征太赫兹脉冲脉宽的参数, 经傅里叶变换可获得其频谱分布, 并得到其中心频率和带宽。该值不同时, 太赫兹脉冲中心频率、脉宽和谱宽有所不同。图 2 是输入太赫兹脉冲的时域波形和频域光谱图, 其中 T_0 取 100 fs。

可以看出, 其中心频率约为 2.25 THz, 带宽(半高全宽)约为 3.61 THz。

如前所述, 基于差分探测的锁相放大器输出信号包括了太赫兹电场和强度时域信号。因此, 液体的非线性系数、探测激光聚焦光强、探测光路中的 BBO 晶体产生的 E_{CSH} 直接决定了 A 与 B 的比值, 从而确定了锁相放大器输出端信号更逼近于太赫兹电场时域信号还是其强度时域信号^[15]。采用图 2 所示的待测太赫兹脉冲, 取 A/B 为 4 个不同的比值(1:1、2:1、5:1、10:1)即可获得该信号时域具体形状。其中, 图 3(a)为时域信号, 图 3(b)为频域信号。为了显示出该比值对时域和频谱信号的影响, 将 4 个不同比值的振幅分别进行了归一化。

由电磁波基本理论可知, 任何能够在自由空间中传播的电磁辐射需满足 $\int E(t) dt = 0$, 即其频谱分布不能具有零频分量($f=0$ Hz 处幅值需为 0)。零频分量的电磁波辐射意味该局域存在静电场和净电荷, 但在自由空间中不可能有净电荷。图 2(b)遵循该原理, 在零频处的振幅为 0。图 3(a)中, 信号由于包含了太赫兹电场波形和强度信号, 且强度与电场的平方成正比, 不满足 $\int E(t) dt = 0$, 使得其频谱在零频部分具有一定的幅值, 且信号中强度份量越高, 零频部分的幅值越大。因此随着 A/B 的增高, 强度份量降低, 合成信号中的零频部分降低, 合成信号更逼近电场信号。该探测技术趋近相干探测。

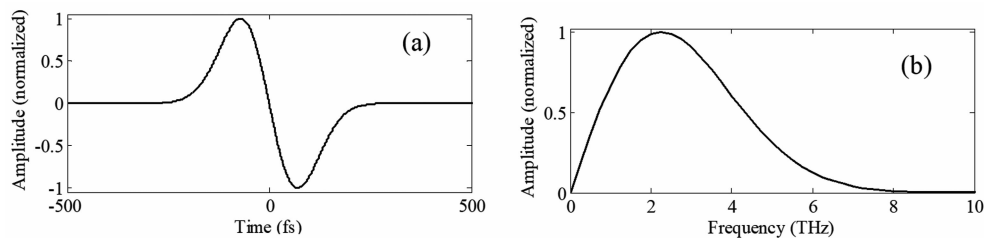


图 2 待探测的太赫兹脉冲示意图: (a)时域波形; (b)频谱分布($T_0=100$ fs)

为了更明显地显出该变化趋势, 分别计算了 A/B 值从 1:1 增加到 20:1 的脉冲波形和频谱分布图(见图 4)。其中对不同 A/B 值的频域分布曲线进行相应的归一化处理。图 4(a)和图 4(b)所示分别为时域波形和频谱随该比值的演化情况。可以看出, 当 A/B 比值较小时, 时域中振荡的波形正值大负值小, 频域中零频部分有明显的振幅; 当 A/B 比值接近 10 及更大时, 时域信号和频域信号表现出正常的电磁辐射特性。图 5 所示为零频分量振幅随 A/B 的变化趋势。可以看出, 随着该值逐步增大, 零频分量幅值逐步减小: A/B 为 1 时, 幅值为 0.47; A/B 为 10 时, 幅值为 0.05; A/B 增加到 100 时, 幅值约为 0.005(中心频率幅值归一化为 1); A/B 增加到更大值时, 零频分量会更小。可见即使在使用差分探测获得的信号中包含太赫兹电场和强度信号, 当强度比例较小时(即 A/B 比值较大时), 输出信号也会表现出很好的电磁辐射的特性, 从而可以认为该探测技术为相干探测。

上述计算中将太赫兹脉冲参数 T_0 选择为 100 fs, 其中心频率约为 2.25 THz, 带宽为 3.61 THz。依次改变该参数为 200 fs(中心频

率为 1.13 THz, 带宽为 1.63 THz)、300 fs(中心频率为 0.75 THz, 带宽为 1.16 THz)、400 fs(中心频率为 0.56 THz, 带宽为 0.87 THz)、500 fs(中心频率为 0.45 THz, 带宽为 0.70 THz)。虽然太赫兹脉冲中心频率和带宽相应发生改变, 但是重复计算 A/B 值不同时太赫兹信号的时域波形和频谱分布, 发现图 3~图 5 呈现的结果和规律不变。因此, 本文结果对不同脉宽的太赫兹信号相干性结论具有普适性。

3 讨论

基于液体介质的宽带太赫兹波相干探测方法充分利用了飞秒激光脉冲与待测太赫兹波在液体中的四波混频过程产生激光二次谐波, 且在探测光路中加入 BBO 晶体产生激光二次谐波, 以控制二者的相干叠加, 从而获得太赫兹电场信号。与气体相比, 液体具有更大的非线性系数^[3], 容易增加探测信号中的电场分量比值, 使得该技术需要更小的探测激光能量且有较好的相干性。目前, 基于液体的相干探测方法对探测激光能量的要求与基于空气时相比降低了 2 个数量级^[13]。

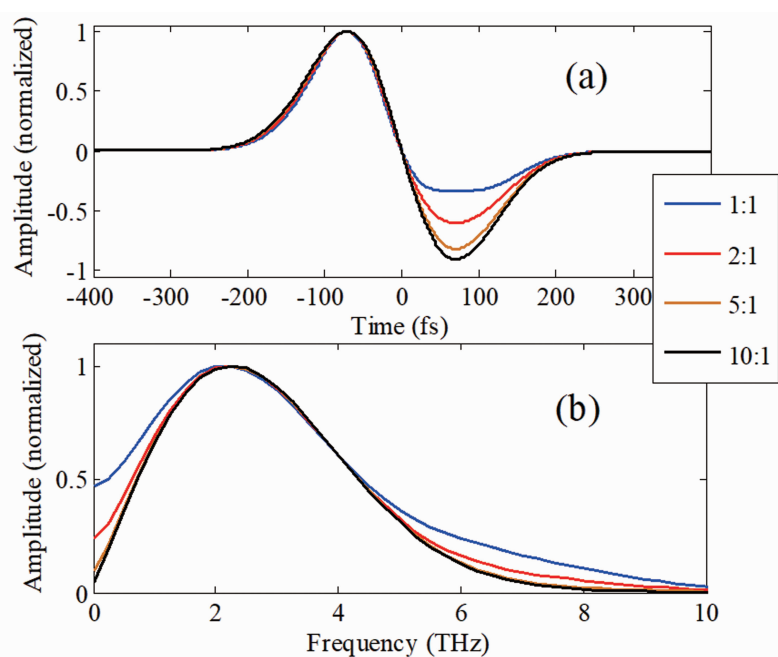


图 3 不同比值的太赫兹探测结果

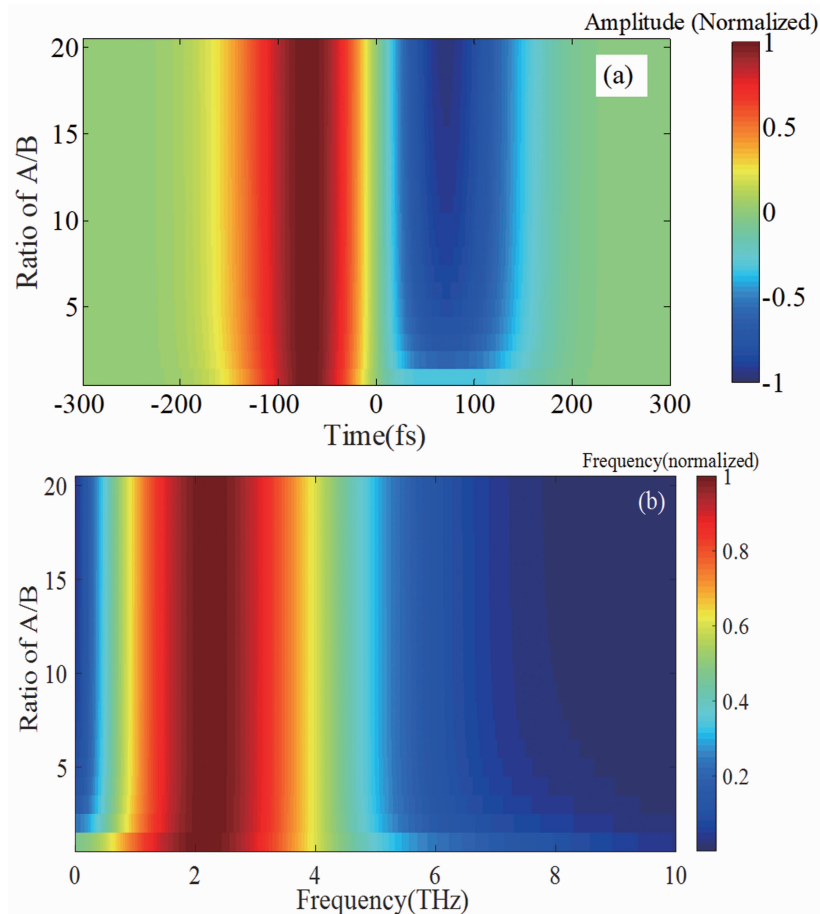


图 4 A/B 从 1:1 到 20:1 时的时域信号(a)和频域信号(b)分布演化规律($T_0=100$ fs)

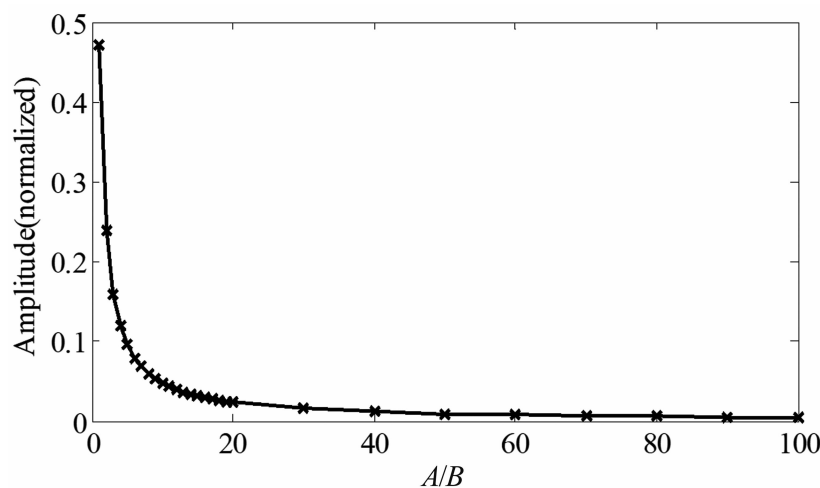


图 5 零频分量振幅随 A/B 值的变化趋势

在液体相干探测技术中,三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 作为体现作用介质特性的一个重要参数,通过影响 A/B 值的大小对探测结果的相干性有重要影响。采用薄的固体材料(如玻璃或晶体)作为探测介质,并结合太赫兹液体探

测的基本原理在探测光路中加入 BBO 晶体产出 E_{CSH} ,从而可能提供一种新的更灵敏的方法。表 1 列举了部分气体、液体和固体的三阶非线性系数 $\chi^{(3)}$ (作为参考)。可以看出,液体的三阶非线性系数比空气高 3 个量级左右,固

表 1 气体、液体与固体材料的三阶非线性系数对比

探测介质	$\chi^{(3)}$ (m^2/V^2)	参考文献
气体	空气	[14]
	氮气	[16]
	氟气	[16]
	甲烷	[16]
液体	水	$(1.83 \pm 0.10) \times 10^{-22}$; 2.5×10^{-22} [18]; [14]
	乙醇	5.0×10^{-22} [18]
	四氯甲烷	1.1×10^{-21} [14]
	氯化钠溶液 [#]	$(1.79 \pm 0.09) \times 10^{-22}$ [18]
	葡萄糖溶液 [#]	$(1.83 \pm 0.08) \times 10^{-22}$ [18]
固体	硒化锌	6.2×10^{-20} [14]
	硒化镓	1.4×10^{-18} [14]
	二氧化钛	2.1×10^{-20} [14]

[#] 溶液为饱和溶液

体比液体/氯化钠溶液高 2 个量级左右。因此利用液体探测的基本光路, 将固体薄膜作为相干探测宽带太赫兹辐射的作用介质, 预计需要更小的探测激光能量, 从而可以降低对飞秒激光系统能量的要求, 且可获得更高的灵敏度。

Tomasino A 等人利用微纳加工技术, 根据空气相干探测技术原理制作了一款微纳结构的固态元件。在其两端电极加上调制的偏置电场, 电极的间隙为 $1 \mu\text{m}$ 量级。基于固体材料较大的非线性系数, 该模块能够利用较小的探测能量(约 100 nJ)对宽带太赫兹辐射实现相干探测, 并被命名为 Solid-State-Biased Coherent Detection (SSBCD)^[19]。其实验结果显示, 该模块测量的太赫兹带宽与空气相干探测技术比较接近。这项技术中依然需要使用调制电场, 并为锁相放大器提供参考频率。而基于液体的相干探测技术由于在探测光路中使用 BBO 晶体产生激光倍频信号, 并使用斩波器调制太赫兹脉冲重复频率, 不需要额外的调制电场, 因此是一种全光探测方法。

如今, $5 \sim 15 \text{ THz}$ 之间的“新太赫兹间隙”正成为太赫兹科学领域中一个新的挑战^[20], 能够覆盖该波段的相干探测技术会加快该波段的开放与应用。基于太赫兹电场产生的激光二次谐波的太赫兹探测技术, 如 AB-CD、SSBCD 以及液态相干探测技术, 由于探

测带宽受到探测介质的影响较小^[21], 结合短至 30 fs 的超短激光脉冲, 有望在上述“新太赫兹间隙”领域发挥更大作用。

4 结束语

基于液体的宽带太赫兹相干探测方法是一种新式探测方法, 其原理同样基于太赫兹电场产生的激光二次谐波。通过在探测光路中加入 BBO 晶体, 产生激光二次谐波, 用于相干合成太赫兹电场产生的二次谐波, 以完成对太赫兹电场波形的相干性探测。本文介绍了该技术的基本原理和实验光路。该技术中, 激光二次谐波的强弱直接决定了探测信号包含的太赫兹电场和强度份量; 通过数值计算研究了该过程中太赫兹电场与强度比例不同时的具体表现, 分析了该技术从非相干性到相干性过程的过渡。这个比值直接决定了探测信号更逼近太赫兹电场信号还是强度信号的时间波形。计算结果显示, 当该值大于 10 时, 混合信号更逼近电场信号。因此该探测技术可认为是相干探测。本文将有助于理解太赫兹液体相干探测过程中的物理机制和实验表现, 促进其在宽带太赫兹科学技术中的应用。

参考文献

- [1] 徐强, 苏强, 鲁丹, 等. 基于激光成丝的太赫兹

- 时域光谱系统研究综述 [J]. *中国激光*, 2019, **46**(6): 0614010.
- [2] 薛冰, 范文慧, 刘海亮, 等. 基于超快飞秒激光技术的太赫兹波产生与探测 [J]. *光子学报*, 2008, **37**(2): 1-5.
- [3] 刘尚建, 余菲, 李凯, 等. 太赫兹光谱与成像在生物医学领域中的应用 [J]. *物理*, 2013, **42**(11): 788-793.
- [4] Burford N M, El-Shenawee M O. Review of Terahertz Photoconductive Antenna Technology [J]. *Optical Engineering*, 2017, **56**(1): 010901.
- [5] Wu Q, Zhang X C. Freespace Electrooptic Sampling of Terahertz Beams [J]. *Applied Physics Letters*, 1995, **67**(12): 3523-3525.
- [6] Dai J M, Xie X, Zhang X C. Detection of Broadband Terahertz Waves with a Laser-Induced Plasma in Gases [J]. *Physics Review Letters*, 2006, **97**(10): 103903.
- [7] Karpowicz N, Dai J, Lu X, et al. Coherent Heterodyne Time-domain Spectrometry Covering the Entire “Terahertz Gap” [J]. *Applied Physics Letters*, 2008, **92**(1): 011131.
- [8] Du H W, Dong J M, Liu Y, et al. A Coherent Detection Technique Via Optically Biased Field for Broadband Terahertz Radiation [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2017, **88**(9): 093104.
- [9] 戴建明, 张伟帆, 陈宇轩, 等. 液态水辐射源产生太赫兹波的研究进展 [J]. *中国激光*, 2021, **48**(19): 1914001.
- [10] Qi J, Yi W, Williams K, et al. Observation of Broadband Terahertz Wave Generation from Liquid Water [J]. *Applied Physics Letters*, 2017, **111**(7): 071103.
- [11] Dey I, Jana K, Fedorov V Y. Highly Efficient Broadband Terahertz Generation From Ultrashort Laser Filamentation in Liquids [J]. *Nature Communications*, 2017, **8**(1): 1184.
- [12] Tan Y, Zhao H, Wang W M, et al. Water-based Coherent Detection of Broadband Terahertz Pulse [J]. *Physical Review Letters*, 2022, **128**(9): 093902.
- [13] 王国阳, 张明浩, 肖文, 等. 基于液体对太赫兹脉冲进行高灵敏探测 [J]. *中国激光*, 2023, **50**(17): 1714006.
- [14] Boyd R W. *Nonlinear Optics* (Third Edition) [M]. Amsterdam: Elsevier, 2008.
- [15] Du H W. Systematical Study on the Role of Laser Second Harmonic Generation in the Terahertz Air Coherent Detection [J]. *Optics and Laser Technology*, 2020, **130**(23): 106312.
- [16] Lu X F, Karpowicz N, Zhang X C. Broadband Terahertz Detection with Selected Gases [J]. *Optical Society of America B*, 2009, **26**(9): A66-A73.
- [17] Kajzar F, Messier J. Third-harmonic Generation in Liquids [J]. *Physical Review A*, 1985, **32**(4): 2352-2368.
- [18] Delphine D, Emmanuel B. Quantitative Characterization of Biological Liquids for Third-Harmonic Generation Microscopy [J]. *Biophysical Journal*, 2007, **92**(2): 603-612.
- [19] Tomasino A, Mazhorova A, Clerici M, et al. Solid-state-biased Coherent Detection of Ultra-broadband Terahertz Pulses [J]. *Optica*, 2017, **4**(11): 1358-1362.
- [20] Du H W. Investigation on Response Function of Terahertz Air Coherent Detection Technique [J]. *Applied Physics B*, 2020, **126**(7): 124.
- [21] Dhillon S S, Vitiello M S, Linfield E H, et al. The 2017 Terahertz Science and Technology Roadmap [J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2017, **50**(4): 043001.