

铈酸锂强场太赫兹光源及其应用

吴晓君^{1,2*}, 任泽君¹, 孔德胤¹, 郝思博³, 代明聪¹, 熊虹婷¹, 李培炎¹

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应用北京市重点实验室, 北京 100191;

³北京航空航天大学网络空间安全学院, 北京 100191

摘要 高能强场太赫兹 (THz) 激光在量子材料物态调控、全光电子加速、生物医疗等方面拥有重要的应用价值。高效率、高光束质量、高稳定性 (简称“三高”) 的强场 THz 光源的缺乏极大阻碍了强场 THz 科学与应用的发展。基于飞秒激光抽运铈酸锂晶体通过倾斜波前技术产生高能强场 THz 辐射是突破上述“三高”强场 THz 光源的有效途径之一。回顾了铈酸锂倾斜波前技术的发展历程, 从理论原理、实验方法、应用实例等三个方面综述了国内外铈酸锂强 THz 源及其应用现状, 阐述了北京航空航天大学近五年与国内外高校院所合作实现的铈酸锂 THz 强源及其应用重要进展。

关键词 超快光学; 强场太赫兹辐射; 铈酸锂; 倾斜波前; 飞秒激光

中图分类号 O441.4

文献标识码 A

DOI: 10.3788/CJL202249.1914001

1 引言

太赫兹 (THz) 科学是世界科技前沿重大研究领域。THz 技术在航空航天、国家安全、通信雷达、量子信息、材料科学、生物医疗等领域有重要的应用价值。THz 电磁波位于微波与红外之间, 其频谱宽度是微波与毫米波总和的 30 倍, 是各个国家竞相抢占的战略资源, 在军用和民用上都存在大量需求。但是, 该频段处于电子学与光子学的交界处, 尚未充分开发和利用。THz 频段具有很多独特的性质, 比如皮秒级窄脉宽的时间分辨能力、对纸张和衣物的穿透能力、对许多物质的光谱特性、低光子能量等。这些独特的性质赋予它许多重要的应用价值, 比如无损检测、通信雷达、安检反恐、生物医疗等。然而, 阻碍 THz 科学与应用发展的关键在于缺乏高性能 THz 源、核心器件、系统集成等。其中, 高性能 THz 辐射源的缺乏成了亟需攻关的重点和难点。

产生 THz 辐射的技术路线主要包括电学和光学^[1-4]。其中, 以光学方法产生的 THz 源是实现材料表征与器件测量的重要手段, 已逐步从实验室研究走向工业应用。在光学方法产生的 THz 辐射源中, 又可分为脉冲和连续波两种。前者主要基于飞秒激光抽运, 而后者通过半导体激光器拍频实现。基于飞秒激光脉冲激发非线性晶体、光电导天线、等离子体等方法产生的 THz 脉冲具有超快时间分辨、超宽频谱分布等

特点, 已广泛应用于 THz 时域光谱技术 (THz-TDS) 对材料介电响应的表征与测量、感知与成像等方面。基于半导体分布式反馈 (DFB) 激光作用光电导天线通过拍频技术产生连续 THz 波, 在气体传感、THz 通信等方面也已被广泛应用。但是, 上述 THz 光源的辐射效率低, 能量小, 直接导致 THz 与物质相互作用的非线性效应、新奇量子物态调控、电子加速与生物医疗等多方面前沿科学与应用研究受到制约。因此, 相关领域的研究人员都在竭尽全力为产生符合“三高”条件的强 THz 源贡献力量。近期, 张骥等^[5]提出将强激光与靶前表面开口的锥形纳米丝靶结构相互作用, 产生的 THz 波场强比用普通纳米丝靶产生的场强增强了 3 倍, 这一结果进一步提高了激光到 THz 能量的转化效率, 推动了强场 THz 波领域的发展。随后, 李忠洋等^[6]提出了一种在晶体极化声子共振区域利用级联差频的方法产生 THz 波的方法, 为获取高功率的高频 THz 波提供了参考。本文主要对基于铈酸锂倾斜波前技术产生 THz 辐射的情况展开讨论。

强场 THz 脉冲具有极强瞬态电场和磁场, 可应用于自由空间电子加速与调控, 可直接激发电子或磁子得到关联效应、超导效应和磁性等。THz 光子能量在 meV 级, 具有极低热效应, 其能量与量子材料内多种序能量尺度匹配, 因此能够实现物相定向操控, 还可用于研究非热生物学效应。THz 光场能够实现模式选择的声子调控, 通过声子调控这个新的途径来实现对

收稿日期: 2022-05-24; 修回日期: 2022-07-12; 录用日期: 2022-07-20

基金项目: 国家自然科学基金 (61905007)

通信作者: *xiaojunwu@buaa.edu.cn

电子性能的调控,从而获得声子诱导的非平衡量子物态,有望推动量子计算、量子传感和量子信息处理等的发展。但是,目前基于飞秒激光与物质相互作用产生的高能强场 THz 光源,其辐射效率、光束质量、稳定性等方面还有待进一步提升。

本文针对高效率、高光束质量、高稳定性(简称“三高”)强场 THz 辐射源严重缺乏的国内外现状,基于飞秒激光与铌酸锂材料相互作用机理,聚焦铌酸锂倾斜波前技术产生“三高”强场 THz 源的历史沿革、理论研究、实验方法和应用实例,分析了铌酸锂 THz 强源辐射效率饱和机理,为后续更高能量的极端 THz 强源研制与应用奠定基础。

2 铌酸锂 THz 强源发展历程

基于铌酸锂倾斜波前技术产生 THz 辐射是目前获取 THz 强源的有效途径之一。1971 年从铌酸锂晶体中产生了世界上第一个 THz 脉冲。经过进一步研究,2002 年提出了倾斜波前技术提高 THz 辐射效率,从 2003 年开始进入铌酸锂倾斜波前技术产生 THz 辐射的原理验证与实验突破等一系列深入的研究中。下面将介绍基于铌酸锂倾斜波前技术产生强 THz 辐射的发展历程。

2.1 倾斜波前技术起源(1971—2002 年)

早在 1971 年,加州大学沈元壤教授课题组 Yang 等^[7]就通过脉冲激光抽运铌酸锂晶体产生了世界上第一个 THz 脉冲辐射,但由于激光和 THz 辐射在铌酸锂材料中的折射率存在巨大差异(光学频段折射率约为 2.3, THz 频段折射率约为 4.9),相位匹配严重失真,产生的 THz 辐射效率很低。此后,铌酸锂晶体在 THz 产生领域中逐渐被忽视。直到 2002 年,由匈牙利佩奇大学的 Hebling 等^[8]提出倾斜波前技术,解决了铌酸锂晶体中近红外光与 THz 相位失配的问题,延长了晶体内产生 THz 辐射的有效作用距离,提升了 THz 辐射效率,让铌酸锂晶体重新回到 THz 辐射材料的选择视野中。

2.2 原理验证与实验发展(2003—2007 年)

由于铌酸锂晶体具有非线性系数大、制造工艺成熟、破坏阈值高等特点,人们逐渐认识到基于飞秒激光作用铌酸锂有望实现高能强场 THz 辐射的产生。倾斜波前技术的提出解决了相位失配的难题,铌酸锂 THz 强源获得了快速的发展。Hebling 教授团队及其合作者在这一阶段完成了很多重要工作。2003 年,Stepanov 等^[9]采用两个消色差透镜进行成像,利用 2.3 μJ ,重复频率为 200 kHz 的近红外激光脉冲在掺杂 2%(摩尔分数,下同)Mg 的铌酸锂晶体中,在室温情况下,获得了 30 pJ 的 THz 脉冲,相应的能量转化效率为 0.0013%。通过进一步将铌酸锂晶体降温到 77 K,获得了 98 pJ 的 THz 脉冲能量,能量转化效率为 0.0043%。2004 年,Pálfalvi 等^[10]提出在铌酸锂晶

体中减少 Mg 的掺杂量可以有效提升 THz 脉冲能量的辐射。同年,Hebling 等^[11]还利用 2.3 μJ ,重复频率为 200 kHz 的钛宝石飞秒激光器作用于掺杂 0.6% Mg 的铌酸锂晶体中,在 77 K 下获得了 400 pJ 的 THz 脉冲能量,其量子转化效率达到 3.4%。2005 年,Stepanov 等^[12]利用 500 μJ 的激光脉冲在室温条件下获得了 240 nJ 的 THz 脉冲能量,在抽运能量为 300 μJ 时激光到 THz 能量的转化效率最高为 0.05%。在 2007 年,Hebling 教授团队与麻省理工学院的 Nelson 教授团队合作,由 Yeh 等^[13]利用与 2004 年相似的实验装置^[11],在一台重复频率为 10 Hz 的激光器驱动下获得了 10 μJ 的 THz 能量输出,相应激光到 THz 能量的转化效率达到 0.06%。在这一阶段的研究中,以 Hebling 教授为主的研究团队从原理验证和实验实现方面,将飞秒激光抽运铌酸锂晶体,通过倾斜波前技术实现了 THz 能量从皮焦量级到微焦量级的提升。

2.3 能量转化效率提升(2008—2013 年)

铌酸锂 THz 强源在前期原理验证与实验发展阶段获得的重要进展表明,倾斜波前技术有望获得更高能量、更强电场的 THz 脉冲辐射。为此,下一阶段的研究聚焦在提高抽运激光能量、优化脉冲宽度、提升 THz 辐射效率等方面。2008 年,Hebling 教授继续与 Nelson 教授团队合作,由 Yeh 等^[14]利用重复频率为 1 kHz、抽运脉冲能量为 6 mJ 的钛宝石激光器在铌酸锂晶体中利用倾斜波前技术将激光到 THz 能量的转化效率提升到 0.07%。同年,Stepanov^[15]与日内瓦大学的团队合作,利用 28 mJ 的飞秒激光脉冲在铌酸锂晶体中获得了 30 μJ 的单周期 THz 脉冲,其重复频率为 100 Hz,转化效率约为 0.1%。到 2010 年,该合作团队^[16]针对太瓦激光脉冲的应用进行优化,利用 700 fs、120 mJ 的近红外激光脉冲得到了以 0.19 THz 为中心、重复频率为 10 Hz 的 50 μJ 单周期 THz 脉冲,其激光到 THz 脉冲能量的转化效率为 0.05%。

这些实验方面的重要进展激发了理论方面的深入研究。2010 年,Hebling 教授团队的 Fülöp 等^[17]率先通过一系列理论计算,预测了不同波长作用下产生 THz 辐射的优化脉冲宽度。例如,对于 800 nm 激光抽运铌酸锂产生 THz 辐射的最优脉冲宽度为 350 fs, THz 产生效率接近 5%。

2011 年,Hirori 等^[18]采用可提供 4 mJ 脉冲能量、中心波长为 780 nm、重复频率为 1 kHz 的钛宝石飞秒激光器抽运掺杂 1.3% MgO 的铌酸锂晶体,获得了 1.2 MV/cm 的 THz 电场峰值和 0.1% 的能量转化效率。这项研究创造了新的 THz 场强世界纪录。

鉴于目前产生的 THz 脉冲能量在非线性光学领域^[19]和半导体超快载流子动力学领域中进行时间分辨研究^[20-21]的良好发展,Fülöp 等^[22]在 2011 年提出将光栅与晶体直接接触的方案,认为可以有效获得更高

能量的 THz 脉冲以及更好的光束质量。与此同时,他们通过计算结果预测在 $1\ \mu\text{m}$ 激光抽运情况下,采用 600 fs 的抽运脉冲,THz 峰值电场强度可提升到 4 MV/cm 以上。如果将晶体冷却到 10 K,能量转化效率将可以达到 13%。次年,他们在理论分析预测的基础上,利用中心波长为 1030 nm、重复频率为 10 Hz、脉冲持续时间为 1.3 ps 的高能皮秒 Yb:YAG 啁啾脉冲放大系统进行驱动,当抽运能量为 50 mJ 时获得了能量为 125 μJ 的 THz 脉冲,其相应的能量转化效率为 0.25%^[23]。

综上所述,该阶段的关键突破在于将 THz 单脉冲能量提升到了 125 μJ ,能量转化效率提升到了 0.25%,获得了 1 MV/cm 以上的 THz 强场输出。

2.4 毫焦量级强源输出(2014—2019年)

在多年不断探索的过程中,利用铌酸锂倾斜波前技术产生 THz 脉冲已经取得了阶段性的突破,THz 能量从几十微焦提升到几百微焦。这些重要进展让人们看到了毫焦量级高能强场 THz 产生的希望。2014年,Fülöp 等^[24]利用中心波长为 1030 nm、重复频率为 10 Hz、脉冲持续时间为 785 fs 的 Yb:YAG 高能激光器系统,获得了 0.4 mJ 的 THz 能量,相应的能量转化效率为 0.77%。尽管 THz 能量已经提升了一个数量级,但是实验结果的能量转化效率远不如理论预测的结果,这促使人们重新审视现有实验中使用的模型。

2014年,Ravi 等^[25]提出了一个 1D 空间模型,考虑了影响能量转化效率的众多因素,所得结果可以与实验结果保持较好的一致性。同时期,吴晓君(Wu)等^[26]系统地研究了影响激光到 THz 转换的抽运脉冲参数,在室温条件下利用 150 fs 的激光脉冲实现了 0.12% 的最大能量转化效率,并提出对晶体进行低温冷却与减少菲涅耳损失可以有效提升能量转化效率。2015年,Ravi 等^[27]提出了一种 2D 模型,弥补了 1D 模型中出现高估能量转化效率的缺陷。随后,吴晓君(Wu)等^[28]利用 THz 时域光谱仪对铌酸锂晶体的折射率和吸收系数进行了温度依赖性测量,发现对晶体降温可以降低对 THz 波的吸收以及晶体在 THz 频率范围内的折射率,进一步为优化倾斜波前装置提供了思路。2016年,吴晓君(Wu)等^[29]采用 4.7 ps、1030 nm 的激光脉冲获得了峰值场强为 31.6 MV/m 的单周期 0.1 THz 脉冲。在此期间,相继有团队提出可以通过适当应用啁啾来提高 THz 能量的输出^[30],也有团队利用将成像光学和接触光栅相结合的混合方案来提高能量输出^[31],甚至有团队设计了在铌酸锂晶体中使用反射式阶梯形结构产生 THz 辐射等多种方案^[32]。

综上所述,铌酸锂 THz 强源的发展在该阶段从实验方面获得了亚毫焦量级强 THz 的输出,从理论方面更进一步向实验结果靠拢。

2.5 能量效率全面突破(2020年至今)

经过多年理论分析的积累,利用铌酸锂倾斜波前技术产生强场 THz 辐射终于迎来了一个新的阶段。2020年,Jang 等^[33]利用可提供 25 fs、2 J 激光的钛宝石激光器驱动,在 35 μm 的薄铌酸锂晶体中获得了 0.71 mJ 的 THz 能量。2021年,吴晓君课题组与中国科学院物理研究所李玉同团队合作,采用中心波长为 800 nm、脉冲持续时间为 30 fs、重复频率为 10 Hz 的钛宝石飞秒激光器进行驱动,通过低温冷却铌酸锂晶体、定制抽运激光光谱和啁啾抽运脉冲,获得了 1.4 mJ 的 THz 脉冲输出,800 nm 激光到 THz 能量的转化效率为 0.7%^[34]。这一工作获得的 THz 能量是目前已报道利用铌酸锂倾斜波前技术获得的最高值。2022年,Guiramand 等^[35]利用中心波长为 1024 nm、重复频率为 25 kHz 的镱激光器抽运掺杂有 MgO 的铌酸锂晶体,在室温情况下当抽运能量为 227 μJ 时获得了 1.3% 的激光到 THz 能量的转化效率。这一实验结果是当前利用铌酸锂倾斜波前技术获得的激光到 THz 能量转化效率的最高值。

回顾采用铌酸锂晶体产生强场 THz 辐射的 20 年,其每一个阶段的工作任务总结如图 1 所示。人们通过不断的努力,将 THz 能量从 2003 年产生的 98 pJ 逐渐提升至 2021 年产生的 1.4 mJ,能量转化效率提升到超过 1%。这些耀眼的成就也促进了很多研究领域的发展,如非线性光学与物质之间的相互作用、强场 THz 源操纵电子、生物医疗等。这些研究将在后面的应用实例中讨论。

3 铌酸锂倾斜波前原理

倾斜波前产生 THz 辐射的过程需要考虑到两个不同频段的波(THz 波和抽运激光)之间的相互作用以及各种线性和非线性过程,所以模型十分复杂。主要的模型演变以及各个模型之间的关系绘制在图 2 中。倾斜波前理论经历了四代模型的演变:第一代用简单的 1D 模型预测 THz 产生波形;第二代基于线型源解析解与卷积得到 2D 的 THz 脉冲波形;第三代聚焦在对波函数的严格解,从而得到更准确的 THz 波形和能量;第四代基于传播方向上的缓变包络近似并考虑级联效应等重要物理过程,使得理论预测可以更准确地解释实验现象。

3.1 铌酸锂倾斜波前理论历史沿革

2004年,Hebling 等^[11,36]提出了第一代模型,一个简单的 1D 模型用以预测产生的 THz 光谱随倾斜波前角的变化。从那时起,对于倾斜波前技术产生 THz 辐射的理论研究和数值计算方法已经发展了近 18 年。2007年,Bartal 等^[37]又在 Hebling 等^[11]简单模型的基础上,研究了温度、抽运激光脉冲宽度、晶体长度等对 THz 输出的影响。2005年,Stepanov 等^[12,38]使用线型源的切伦科夫型发射的解析解和实

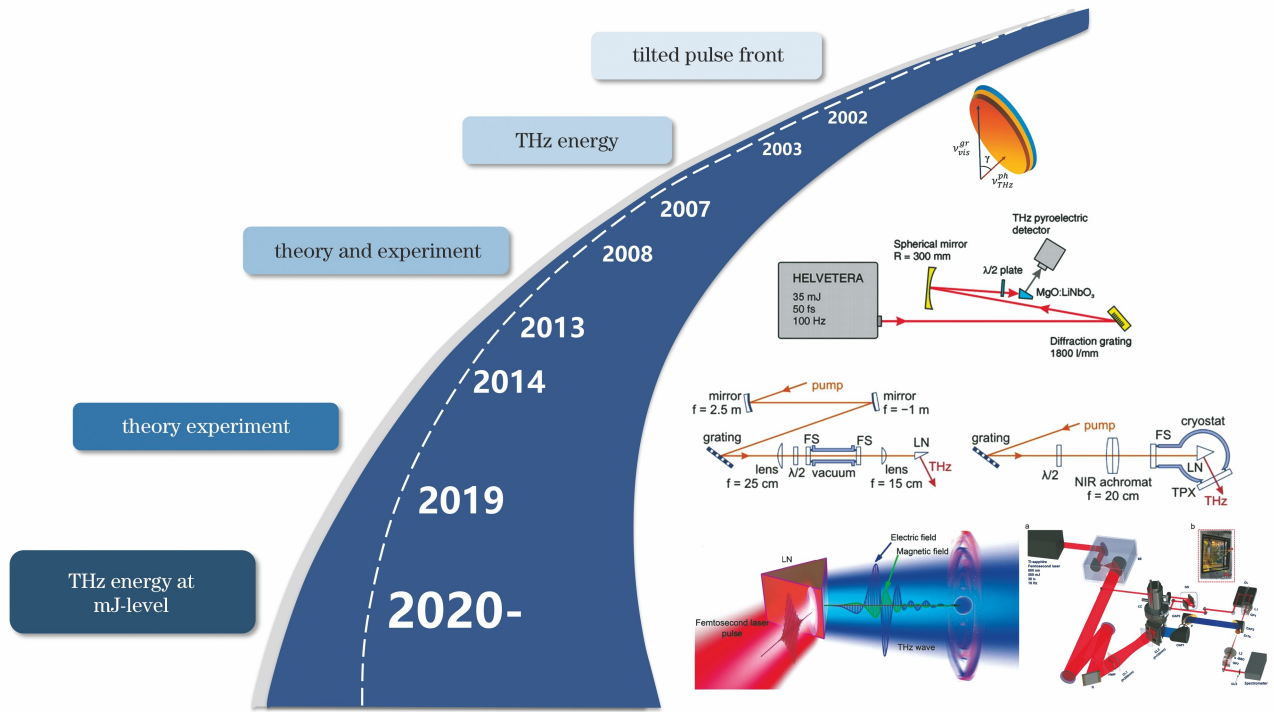


图1 基于铌酸锂倾斜波前技术产生强场 THz 脉冲的阶段性发展示意图

Fig. 1 Schematic diagram of stage development of strong-field THz pulse generation based on lithium niobate tilted pulse front technique

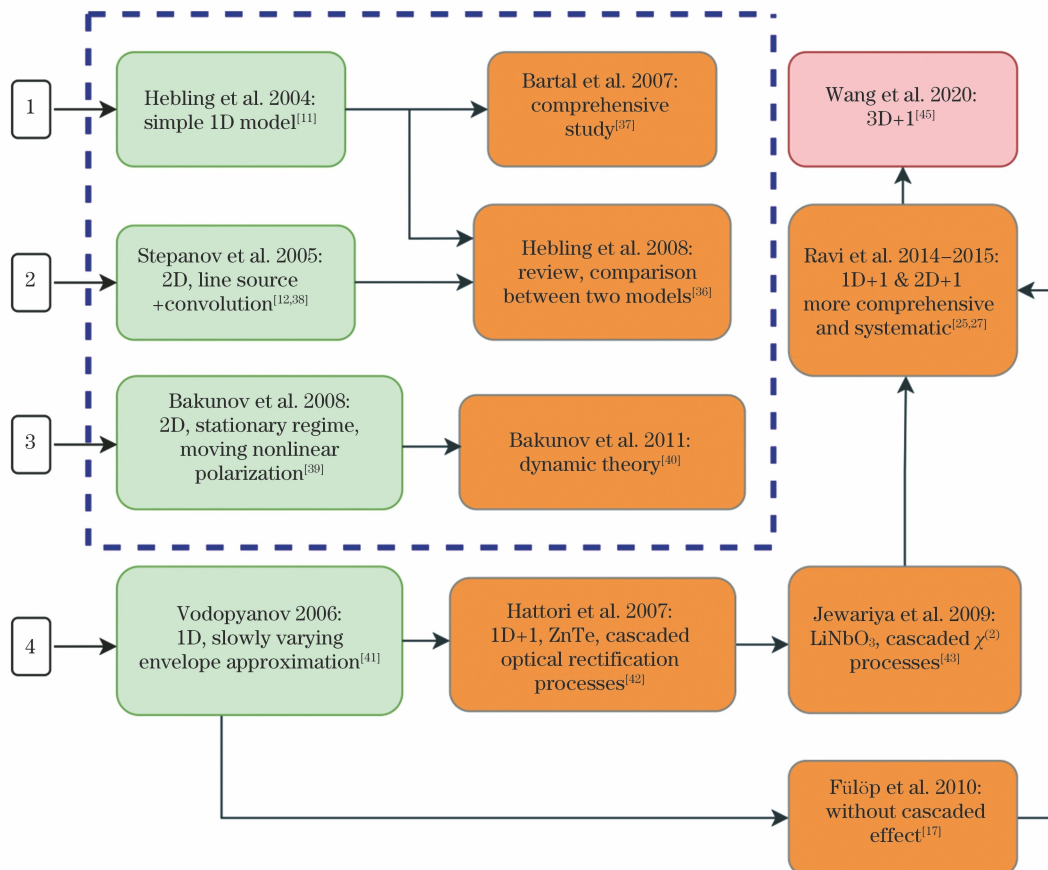


图2 倾斜波前理论模型历史演变图。绿色代表较为独立的模型,黄色是对各独立模型的补充和改进,红色是最新的模型。虚线框内代表着早期的理论模型

Fig. 2 Historical evolution diagram of tilted pulse front theoretical model. Green boxes represent relatively independent models, yellow boxes are supplements and improvements to the former, and red box represents the latest model. Dashed line indicates earlier theoretical models

际抽运光强度分布的卷积来研究倾斜波前在传输过程中的演化,提出了第二代模型。第一代模型和第二代模型还相对简略,但已经可以定性分析实验中产生的一些现象。2008年, Bakunov 等^[39]提出了第三代模型,这是一个基于麦克斯韦方程组的有一个严格解的2D稳态模型,它的激励源是由抽运激光激发的移动的非线性极化量。这个模型解决了简单1D模型中的诸多问题,例如无法求得真实电场幅度、无法考虑脉冲横向尺寸、无法区分前倾脉冲和群速度降低的普通脉冲,以及未考虑 THz 辐射在出射面的透过率等问题。2011年, Bakunov 等^[40]又基于前面的工作提出了一个2D完全动态理论。

虽然 Bakunov 等^[39-40]的模型已经考虑到了诸多因素,但尚未考虑到倾斜波前产生 THz 辐射的关键效应:级联效应。在另一条基于缓变包络近似求解波动方程的路线上,这一效应得以加入到模型之中,产生了第四代模型。Vodopyanov^[41]于2006年在研究周期性反转电光(EO)晶体[例如周期极化铌酸锂(PPLN)]时,首先采用了缓变包络近似方法,使用频域上的非线性极化量来建立1D理论模型,并且采用卷积来计算差频产生的 THz 辐射,它是后面很多理论仿真模型的基础。2007年, Hattori 等^[42]发现在完美相位匹配且无吸收的理想条件下,级联光整流过程会产生高强度的 THz 脉冲,其效率可以超过 Manley-Rowe 极限。为研究级联效应,他们提出了一个基于 ZnTe 的1D模型,引入了材料的色散和吸收,并且使

用两个独立的方程来分别描述 THz 波和抽运光的演化以及相互作用。2009年, Jewariya 等^[43]在这个模型的基础上,深入研究了铌酸锂的级联 $\chi^{(2)}$ 效应,同时也得出级联效应可以产生高效的宽带 THz 波这一结论。新模型论述了将2D模型映射到1D模型计算的可行性^[43],但是这就意味着不考虑光斑尺寸和强度分布。

2010年, Fülöp 等^[17]提出了一个类似的1D模型。模型考虑了材料色散和角色散导致的抽运激光脉冲时间变化,并且通过 Drude 模型引入了光致载流子导致的 THz 吸收。此外,他们还通过将晶体沿平行于抽运脉冲波前方向分割成片来计算 THz 产生效率。2014—2015年, Ravi 等^[25-27]提出了1D+1和2D+1的模型,并且在2019年给出了2D+1模型在抽运激光无耗情况下的解析解^[44]。1D+1和2D+1模型都充分考虑了 THz 和激光之间的耦合相互作用(包含差频产生 THz 辐射和级联效应)、材料吸收、角色散、材料色散、自相位调制和受激拉曼散射,其中2D+1模型还考虑了倾斜波前装置导致的抽运时空变化^[25,27]。2020年, Wang 等^[45]在 Ravi 等^[25,27,44]的基础上提出了3D+1模型,可以额外考虑第三轴上的因素对模型的影响。2021年, Bakunov 等^[46]对该模型提出了一些修改意见。

3.2 理论模型需考虑的关键因素

接下来聚焦飞秒激光抽运铌酸锂晶体产生强场 THz 辐射的物理效应。飞秒激光与物质相互作用产生 THz 辐射的物理机理十分复杂,影响 THz 产生效率的主要因素如图3所示,包括以下方面。

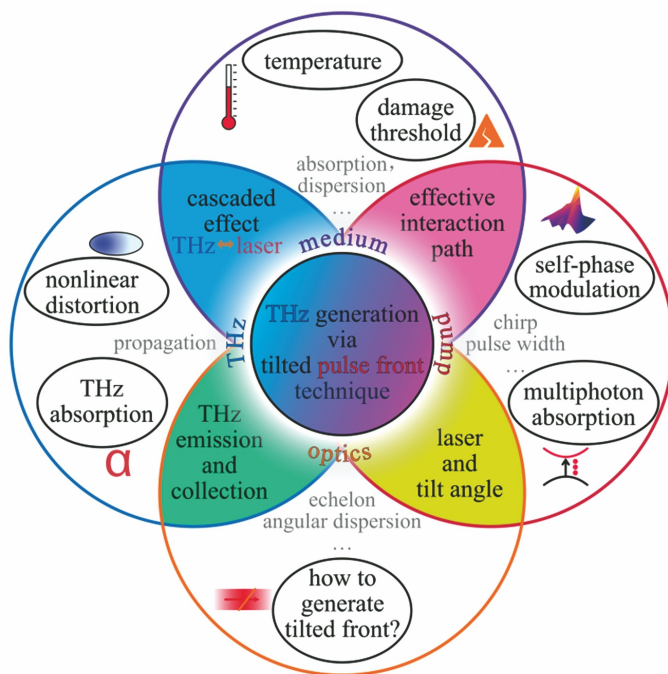


图3 影响 THz 产生效率的关键因素

Fig. 3 Critical factors affecting efficiency of THz generation

(1)有效作用距离/最大 THz 辐射非相干距离与晶体的尺寸。首先,有效作用距离与晶体对 THz 辐射的吸收系数有关。Hebling 等^[11,36]直接使用了吸收系

数的倒数来估算这个有效作用距离。2013年, Bodrov 等^[47]提出自相位调制(SPM)效应会导致 THz 产生效率饱和,并且基于该理论估计了饱和能流密度。这意

意味着通过提高能流密度来提高效率是有极限的,而且为了更准确地估计 THz 产生效率,模型必须考虑到 SPM 效应甚至其他高阶非线性效应。超短抽运脉冲(30 fs)在铌酸锂晶体中传播时,其 SPM 效应相比长脉冲更加强烈,导致频谱展宽和劣化,造成有效作用距离较短。这个问题可以通过外加啁啾的方式(将抽运脉冲拉长)来解决^[48]。但是这个方法会降低脉冲强度,影响非线性效应,从而降低产生 THz 辐射的效率。

(2)多光子吸收效应导致 THz 吸收增强^[48]。THz 吸收可以分为两部分,一部分是由于介质本身的吸收特性导致的,另一部分是激光激发的载流子造成的额外吸收^[17]。

(3)受限于使用光栅产生倾斜波前的方法,以及实验过程中的校准问题,非线性失真效应会导致远离相位匹配角的抽运能量无法有效转化为 THz 辐射。可考虑借鉴最新研究设法解决,如可以将抽运激光制备成椭圆形状,提高相位匹配角附近的能量转化^[34],或采取更加独特的光学结构、设计铌酸锂晶体表面结构,理论上可以提高 THz 产生效率^[49]。

(4)如何收集产生的 THz 波也是一个重要的问题。首先是 THz 波从铌酸锂晶体的出射面出射时的界面反射问题,对于这个问题,Bakunov 等^[39]和 Ravi 等^[27]在理论上已经进行了较充分的讨论。Zhang 等^[34]发现可以利用柔性聚酰亚胺材料在铌酸锂表面进行增透。这个方法依然是临时解决方法,要想完美地透射出所有的超短脉冲 THz 能量,需要对材料折射率和材料厚度做进一步设计。

(5)铌酸锂对 THz 波的吸收和在 THz 频段的折射率都会受到温度的影响^[50]。可以通过液氮降温来大幅降低 THz 辐射的吸收,提高 THz 产生效率。

(6)由于铌酸锂的激光损伤阈值有限,同时也考虑到前面所述的 SPM 和多光子吸收问题,通常需要限制入射到铌酸锂晶体上的能流密度。这意味着需要大光斑和大晶体。如何加工大铌酸锂晶体也是一个重要的问题。而且由于晶体变大后,激光和 THz 在晶体中传播的距离变长,可能会使得某些效应变得更加明显,某些效应不再突出。这些都是需要进一步研究的内容。

(7)级联效应使得 THz 产生效率超过 Manley-Rowe 极限。根据 Manley-Rowe 关系,一个差频光子是通过一个抽运光子的湮灭产生,因此产生的 THz 光子数不能超过抽运光子数。同时由于 THz 波中光子的量子能量很小,所以能量转换率很低。然而,发射一个 THz 光子后,激发光子的能量或者频率会降低一点。如果满足相位匹配条件,这个低能量的光子将继续产生 THz 光子,从而使得效率得到极大的提升,超过 Manley-Rowe 极限^[42-43]。

因此,如果想让理论预测更符合实际实验结果,则需要综合考虑上述各方面因素。

3.3 相位匹配和波前倾斜角

常见的相位匹配条件有角度相位匹配(共线)、温度相位匹配、准相位匹配、角度相位匹配(不共线)和切伦科夫式的相位匹配条件^[51]。前两种方法的可调节范围不大,不太适合 THz 和远红外这两个折射率差别比较大的情况。第三种由于其周期性的结构,比较适合多周期 THz 辐射的产生,但其仍然不是完美的相位匹配,效率很难提高^[36]。第四种对抽运激光的横截面积有限制,不利于通过提高激光能量和面积来提高 THz 输出。而对第五种即切伦科夫式相位匹配,只有当抽运光脉冲的横向束腰远小于指定 THz 波长时,产生该指定波长的 THz 辐射的效率才会比较高^[36]。此外,切伦科夫式相位匹配产生的 THz 波是锥面波,不是平面波,较难收集^[8]。

对于倾斜波前的相位匹配,可以从惠更斯原理或者动量(波矢)守恒出发来理解^[17,36]。如图 4(a)所示,根据惠更斯原理,如果一个具有倾斜波前的大光斑脉冲激光在晶体中以群速度(包络速度) $v_{\text{IR,g}}$ 传播,在其倾斜的波前(红色虚线)上会产生一系列 THz 点源(蓝色点),点源各自产生球面波(天蓝色),汇聚成总波前(蓝色虚线)。这个 THz 总波前和抽运激光的波前平行,以速度 v_{THz} 沿着垂直于激光波前的方向传播。为了使得激光在空间中传播时每个位置产生的 THz 波相互之间相干叠加,就需要满足速度匹配条件 $v_{\text{IR,g}} \cos \gamma = v_{\text{THz}}$,其中 γ 是波前倾斜角。而对于动量(波矢)守恒,如图 4(b)所示,激光的两个光谱分量(k_1, k_2)由于角色散而具有不同的传播方向,它们通过差频产生的 THz 波矢 k_{THz} 如蓝色箭头所示,三个矢量的关系为 $k_2 - k_1 = k_{\text{THz}}$,而 k_{THz} 和激光的平均传播方向(虚线)的夹角依然为 γ ^[36]。

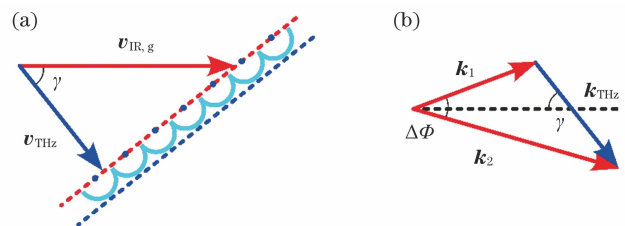


图 4 倾斜波前激光和产生的 THz 波的相位(速度)匹配示意图。(a)惠更斯原理;(b)动量守恒^[36]

Fig. 4 Schematic of phase (velocity) matching of tilted pulse front laser and resulting THz wave. (a) Huygens principle; (b) conservation of momentum^[36]

通常都需要使用光栅来得到角色散,从而产生倾斜的波前^[52]。这种基于光栅的光路,其角色散以及各种对激光的调制作用可以使用光线矩阵来计算^[27]。更细致的计算可以采用光线追踪等算法。此外,时空啁啾、反射式阶梯镜以及在铌酸锂入射面上制作结构产生多级相位差,或者把铌酸锂做成阶梯镜形状,也都可以产生倾斜的波前^[35,53]。

3.4 模型计算主要方法

使用时域有限差分法(FDTD)来直接计算倾斜波前技术产生 THz 辐射这一过程的研究不多,这可能是因为将非线性过程引入到 FDTD 比较困难,而且非线性过程会导致 FDTD 需要极大的计算量和计算时间^[45]。

铌酸锂内部的光整流产生 THz 辐射的过程可以认为是超短脉冲的不同频率分量之间的差频^[36]。如果采用缓变包络近似,可以得到一个非线性薛定谔方程组^[25,42-43]。这个非线性方程组在一般条件下是很难得到解析解的。Wang 等^[45,54-55]提出使用波束传输法(BPM)和分步傅里叶方法来数值求解基于非线性薛定谔方程组的 3D 模型,而 1D 和 2D 模型可以通过简化 3D 模型得到。这两个方法本身就已经非常成熟,

值得采用^[54-55]。

4 铌酸锂单周期 THz 强源

在实际实验中,通过飞秒激光抽运铌酸锂晶体产生单周期强场 THz 辐射的代表性光路如图 5 所示。倾斜波前装置主要包含抽运激光器、用于波前倾斜的元件、成像系统、铌酸锂晶体、THz 探测装置等。飞秒激光先经过两块平面反射镜,随后经光栅的-1 阶衍射后穿过两个柱透镜并成像于铌酸锂晶体,辐射出 THz 脉冲。产生的 THz 脉冲由热电探测器检测,THz 辐射的光束轮廓则可以通过 THz 相机进行表征,利用一条延迟线、一对光栅架、格兰棱镜和光谱仪组成的系统探测光谱变化。

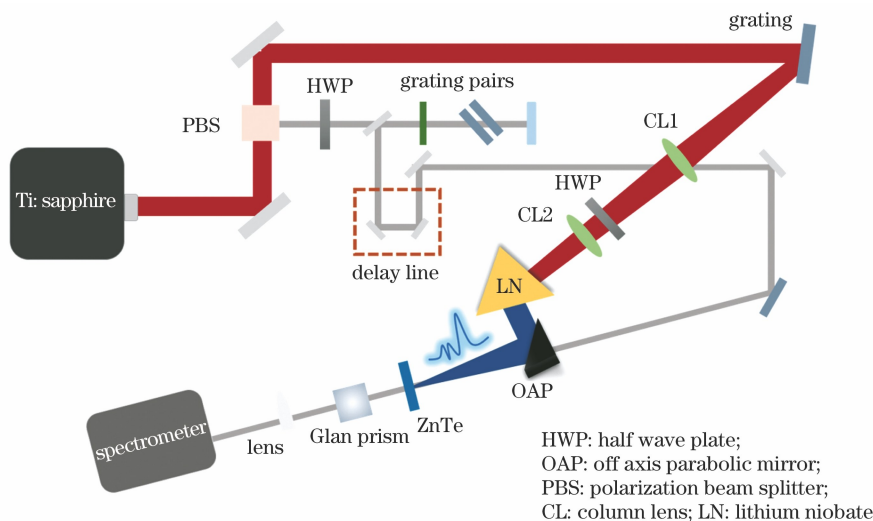


图 5 基于飞秒激光抽运铌酸锂晶体产生单周期强场 THz 辐射的典型光路图

Fig. 5 Typical optical path diagram based on femtosecond laser pumping of lithium niobate crystals to generate single-period strong-field THz radiation

经过几十年的发展,利用铌酸锂产生强场 THz 辐射的激光器主要是钛宝石激光器。在中心波长、脉冲宽度和输出能量等参数的选择方面存在一定的差异,多使用中心波长为 800 nm 的激光器,也有一些实验工作中采用中心波长为 1030 nm 的激光器。脉冲宽度常设置在 50 fs 以下,但是也有一些实验工作中设置脉冲宽度为 100~150 fs。在此前的理论结果中预测利用中心波长为 800 nm 的激光抽运时,最佳的脉冲宽度应为 350 fs,而对应 1 μm 的激光抽运,最佳脉冲宽度为 600 fs。随着激光器的不断优化,激光器可提供的最大能量从微焦量级提升为焦耳量级,为获取高能 THz 辐射提供了便利。但是并非采用高能激光就可以产生高能 THz 辐射,高能激光可能会损伤晶体,进而导致 THz 产生效率下降。

用于倾斜波前的元件主要包括光栅和台阶镜。其中光栅在激光脉冲上诱导角色散,从而实现激光脉冲波前的倾斜,具体倾斜的角度可利用光栅衍射公式及衍射角等计算得出,利用该元件主要产生连续的 THz 脉冲;台阶镜主要用于产生离散的 THz 脉冲,由许多

小镜子组成小台阶将单一的输入光束分成许多小光束,从而产生离散的倾斜脉冲前沿^[32]。

成像系统主要用于将来自光栅的衍射光束成像于铌酸锂晶体中。图 5 中的成像系统由一个平凸柱透镜和一个双凸柱透镜组成。其他可用于成像的方案有组合式三透镜成像、双平柱透镜等。

铌酸锂晶体主要有两种生长方式,分别生长出近化学计量比铌酸锂晶体(sLN)和同成分铌酸锂晶体(cLN)。两者都有光折变损伤性质,当激光照射在晶体上时会导致折射率发生改变。相比之下,sLN 的光折变损伤阈值更高,因而在早期的倾斜波前实验中广泛使用 sLN 产生 THz 辐射。可以通过掺杂 Mg、Zn 等提高 sLN 和 cLN 的这种光折变损伤阈值,有研究表明 cLN 中 Mg 的掺杂摩尔分数以 5%~6.1%为宜,而 sLN 的 Mg 掺杂摩尔分数应在 0.67%以下^[10]。因为铌酸锂对 THz 辐射有很强的线性吸收,因此需要对晶体加以冷却。大部分采用液氮冷却到 80 K 左右,有少数报道采用液氦冷却到 20 K 附近。通过冷却可以有效减弱对 THz 辐射的线性吸收,进一步提高激光到

THz 的能量转化效率。

THz 诊断技术主要包含对能量、波形、光斑等的探测。能量通常利用热释电探测器探头与示波器相连进行探测,将 THz 脉冲能量转化为电压信号即可折算出实际的 THz 脉冲能量。波形可通过传统电光取样技术或者单发诊断技术进行探测,其中电光取样技术主要使用延迟线将探测光与 THz 脉冲进行重合获得 THz 时域波形,探测光路由电光晶体 ZnTe、四分之一波片、沃拉斯顿棱镜及由两个光电二极管组成的平衡探测器组成;最常用于单发诊断的方法是频域光谱干涉技术,其主要是两个间隔较短的脉冲发生干涉现象^[34]。光斑常利用 THz 相机进行表征。

5 铌酸锂多周期 THz 强源

单周期强场 THz 辐射在很多应用方面具有自己独特的优势。多周期强场 THz 产生技术同样在近年来得到快速发展,其也可广泛应用于通信、成像、窄带光谱和物态调控等领域^[56]。此外,多周期强场 THz 辐射具有的窄带频谱、可提升有效作用距离、对称场分布等特点非常适用于相对论级别的电子加速,因此有望用于全光驱动的 THz 电子加速器领域^[57]。

基于铌酸锂倾斜波前技术的多周期强场 THz 产生可列举以下几种方法。

(1)啁啾延迟技术,如图 6(a)所示。该方法可表述为时间整形抽运脉冲的波形,按照特定频率和特定

周期数对抽运脉冲进行准正弦强度调制^[58]。具体方法为先给抽运脉冲加上额外啁啾,然后将其分成具有一定时间延迟的两部分,之后再相干合束。如果分开的两个脉冲之间的时间延迟小于抽运脉冲啁啾后的脉宽,那么两个脉冲相干合束后相当于以固定差频率对抽运脉冲进行准正弦强度调制。脉冲调制频率可通过啁啾或者时间延迟来控制,脉冲周期数则只能通过控制时间延迟来实现。整形后的抽运脉冲进入铌酸锂倾斜波前装置后产生多周期强场 THz 辐射。

(2)迈克耳孙干涉仪产生脉冲串技术,如图 6(b)所示。该方法也属于对抽运脉冲进行时间整形,可描述为以迈克耳孙干涉仪原理为基础,偏振复用干涉仪中经过分束的两束光,通过增加延迟线(反射镜组)和分束片级联产生具有间隔的一定数量(2ⁿ)的脉冲串。为了产生等间距脉冲,特定延迟线之间间距需成倍增加^[59-60]。同理,整形后的抽运脉冲进入铌酸锂倾斜波前装置后也可产生多周期强场 THz 辐射。

(3)阶梯镜方法,如图 6(c)所示。与前面两种时间整形抽运脉冲(空间光程为同一路径)的方法不同,该方法可描述为从空间上分离出特定数量的抽运脉冲,阶梯镜的单级阶梯高度和脉冲入射阶梯镜角度直接影响脉冲的空间和时间间隔。每个抽运脉冲都将基于倾斜波前技术产生一个单周期强场 THz 脉冲。这些分离的 THz 脉冲在空间上发生重叠合并后形成一个多周期强场 THz 脉冲^[61]。

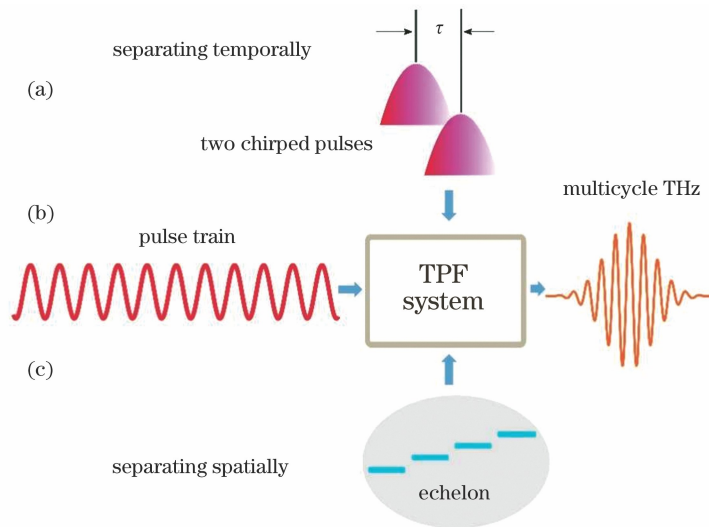


图 6 基于倾斜波前装置产生多周期强场 THz 辐射的三种方法。(a)啁啾延迟技术;(b)脉冲串技术;(c)阶梯镜方法

Fig. 6 Three methods for generating multi-period strong-field THz radiation based on tilted pulse front devices.

(a) Chirp-delay technique; (b) burst technique; (c) echelon

另外一种产生多周期强场 THz 辐射的主要方式为基于 PPLN 的准相位匹配方法,如图 7(a)所示。这种方法在近年来已成为广泛研究的热点,其核心是拍频两束高能激光脉冲,这两束脉冲之间的频率之差为预设的 THz 频段,从而产生多周期强场 THz 辐射。PPLN 中铌酸锂晶体的取向在一定距离内周期反转/极化(二阶非线性系数符号相反),通过改变极化距离

(极化周期)可选择要产生的 THz 频率,其产生 THz 频率的关系可用下式表示^[62]:

$$f_{\text{THz}} = c/\Delta(n_{\text{THz}} - n_{\text{opt}}), \quad (1)$$

式中: f_{THz} 为 THz 频率; c 为真空中光速; Δ 为极化周期; n_{THz} 为铌酸锂在 THz 频段的折射率; n_{opt} 为铌酸锂在激光频段的折射率。

准相位匹配是非线性混频过程中满足相位匹配

条件的一种方法,主要通过反转混频过程中使用的非线性介质的非线性系数符号来弥补在相干距离内混频波的相位差。选择合适的反转周期,在光通过非线性介质的过程中,产生的光子将会与之前产生

的光子相干相长。相位匹配、相位失配和准相位匹配的原理对比如图 7(b)~图 7(d)所示,混频波矢经过周期极化介质的调制弥补波矢失配进而实现相位匹配。

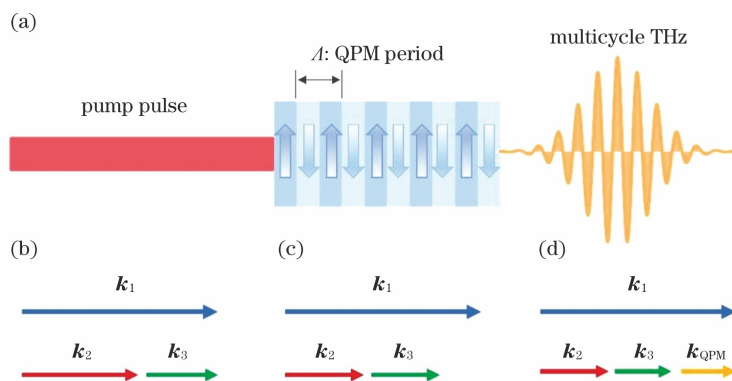


图 7 基于 PPLN 产生多周期强场 THz 辐射的方法。(a)PPLN 产生多周期强场 THz 辐射示意图;(b)相位匹配示意图;(c)相位失配示意图;(d)准相位匹配示意图

Fig. 7 Method based on PPLN to generate multi-period strong-field THz radiation. (a) Schematic diagram of multi-period strong-field THz generation by PPLN; (b) phase-matching schematic; (c) phase-mismatching schematic; (d) quasi-phase-matching schematic

最初采用 PPLN 产生多周期强场 THz 辐射的效率只有 10^{-5} ,后来通过改变抽运激光的脉冲形式(主要方法有啁啾延迟、脉冲串和级联光参量放大)实现了转化效率的大幅提升,例如在 2011 年 Chen 等^[58]利用啁啾延迟结合倾斜波前技术实现了窄带可调频谱,产生了最大能量超过 $10 \mu\text{J}$ 的多周期强场 THz 辐射。2015 年 Carbajo 等^[63]在低温冷却掺杂的 MgO:PPLN 中实现了频率为 0.5 THz 的多周期强场 THz 辐射,其转化效率大于 10^{-3} ,能量为微焦级别。2017 年, Ahr 等^[62]使用啁啾延迟结合 MgO:PPLN 晶体的技术,实现了内转化效率 0.13%、能量 $40 \mu\text{J}$ 的多周期强场 THz 辐射;2019 年, Jolly 等^[64]利用大尺寸大孔径 MgO:PPLN 晶体,并通过调控高能钛宝石激光器抽运脉冲的啁啾和延迟进行精细光谱相位控制,实现了转化效率 0.24%、创纪录能量 0.6 mJ 的多周期强场 THz 辐射。

虽然使用 PPLN 产生多周期强场 THz 辐射已成为具有较好前景的主要方法,但是实际操作中还是存在着一定的限制因素,例如 PPLN 的生产工艺较为复杂,需要使用强电场(电压)反转晶体电偶极矩,并且需要精细调控该电压以便产生的极化区域满足预先设计好的形状。如何进一步获得具有良好极化区域的大尺寸 PPLN 更是对工艺技术提出了较大挑战。目前商用的 PPLN 尺寸一般为毫米级别,基本没有能生产大尺寸(厘米级)PPLN 的公司。但是一般强激光实验中使用的抽运输入光光斑较大,因此在实验过程中需要对抽运激光进行缩束或者采用多个 PPLN 晶体拼接的办法。而这两种方法也存在着一定的问题:抽运激光缩束会增强单位面积的激光抽运通量,这可能会损

伤使用的 PPLN 晶体(低温下 PPLN 损伤阈值还会下降);采用多个 PPLN 晶体拼接就涉及更多数量晶体的夹持和固定。此外,为了降低晶体对 THz 波的吸收,提升能量转化效率,实验中还需对 PPLN 进行冷却,这就对实验条件提出了更加苛刻的要求。

为了解决以上问题,近几年来国内外研究人员也开始尝试使用其他方法产生多周期强场 THz 辐射,例如 2020 年 Lemery 等^[65]利用自行设计制造的多片铌酸锂晶圆堆叠的方式产生了最高能量 1.3 mJ、转化效率 0.14% 的多周期强场 THz 辐射;2021 年 Tian 等^[66]利用了铷掺杂的周期极化晶体磷酸钛氧钾(KTiOPO₄,KTP)实现了微焦量级的多周期强场 THz 辐射;2022 年 Hamazaki 等^[67]利用屋脊形 PPLN,相较于常见的块状 PPLN,实现了 THz 产生效率翻倍。这些研究都为多周期强场 THz 产生提供了新的解决思路。

无论是产生单周期还是多周期强场 THz 辐射,主要手段都是基于铌酸锂的光整流方法。铌酸锂晶体材料的非线性系数较高,可大尺寸制造,且加工工艺成熟。这些特点使其成为可用于产生强场 THz 辐射的最热门材料之一。

6 铌酸锂强场 THz 辐射应用

基于以上原理与技术产生的强场 THz 辐射具有很强的瞬态脉冲电场和磁场,可用于 THz 光场与物质非线性相互作用、电子加速、生物医学等领域。图 8 为基于铌酸锂倾斜波前技术产生强场 THz 光源及其在上述领域中的应用前景示意图。下面将依次介绍在这些方面的应用情况。

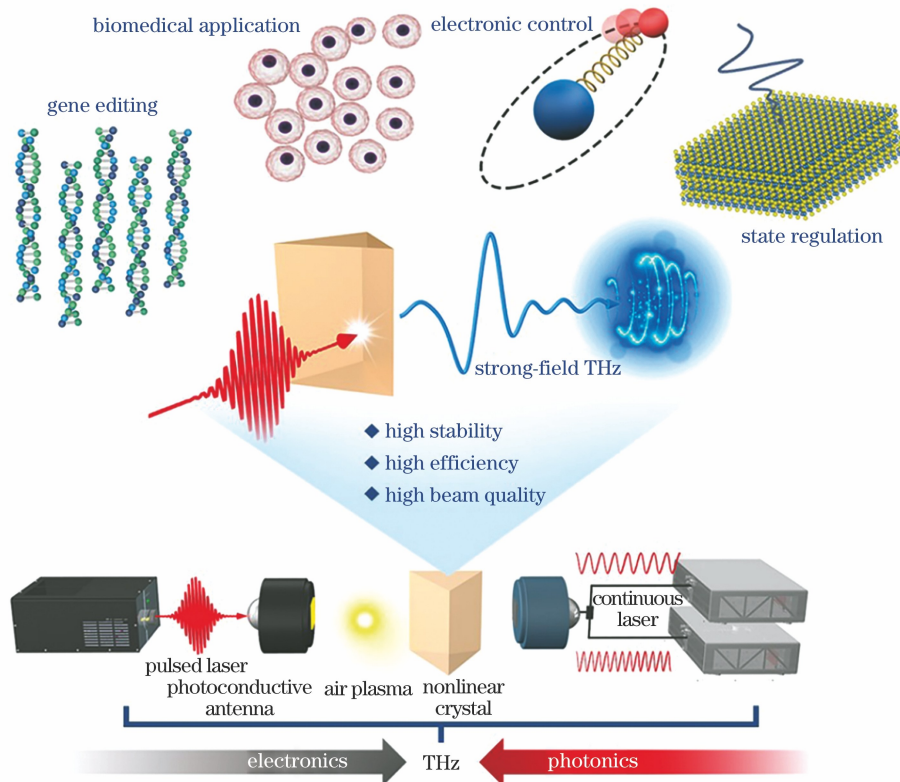


图8 飞秒激光抽运钽酸锂产生的强场 THz 光源及其应用

Fig. 8 Generation of strong-field THz radiation from lithium niobate crystals driven by femtosecond laser pulses and its applications

6.1 强场 THz 物态调控

由于众多材料体系在 THz 频段上有结构共振,使得强场 THz 光源及其对应的多种抽运-探测技术可作为研究材料物态表征与电子结构调控的有力工具。图 9 为强场 THz 辐射对电子、自旋、晶格(声子)、磁子等的相互作用基本过程示意图。自从 2007 年 Yeh 等^[13]利用钽酸锂倾斜波前技术获得了场强为 0.25 MV/cm 的强场 THz 脉冲后,这样的强脉冲使强场 THz 辐射与物质相互作用以及对更广泛的新物理

和新现象进行研究成为了可能。当 THz 场强达到 MV/cm 量级时,可以驱动产生新物态。2013 年, Kampfrath 等^[68]发表了关于强场 THz 辐射与物质相互作用的综述文章,探讨了共振和非共振的 THz 辐射可以控制分子和固体中的电子、自旋和离子自由度等多种实例,认为利用 THz 瞬态场和更高振幅的 THz 脉冲可以对物质实现更复杂的调控,并预言强场 THz 辐射对分子和材料物态的调控有望开辟从 THz 频段到 X 射线的超宽带的物态调控与表征应用。

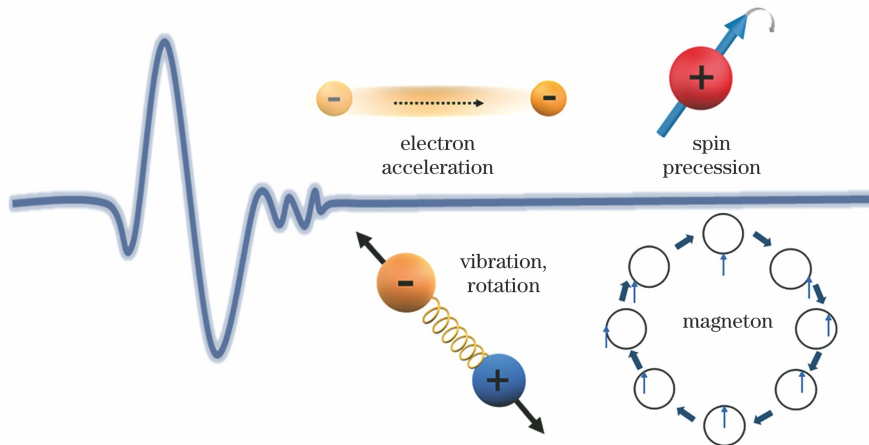


图9 强场 THz 对电子、自旋、分子振转、磁子相互作用的基本过程示意图

Fig. 9 Schematic diagram of the basic process of strong-field THz radiation on the interaction of electrons, spins, molecular vibration and rotation, and magnetons

集中在强 THz 辐射在半导体材料及其量子结构中

产生的场驱动碰撞电离、谷间散射、隧穿效应等引起的非线性效果。2009 年, Hoffmann 等^[69]利用电场强度

为 100 kV/cm 的 THz 脉冲结合 THz 抽运-探测技术,研究了碲化钢中的皮秒载流子动力学。通过这样的方案,他们观察到碲化钢在强场 THz 辐射的激励下,碰撞电离和载流子产生比平衡态高 7 倍。同年,他们利用同样的方案研究了砷化镓中极热自由电子的谷间和谷内动力学过程,以及碲化钢中通过碰撞电离产生新载流子的过程^[70]。在这样的研究中,弱场单周期 THz 脉冲用于探测强场 THz 抽运材料产生的吸收变化,实现了皮秒时间尺度上载流子动力学行为的表征。2017 年,Pein 等^[71]应用电场强度为 320 kV/cm 的 THz 脉冲照射在周期性金属线结构(间隔为 2 μm)上实现 THz 场增强,在皮秒时间尺度上实现了超快 THz 脉冲驱动胶体量子点薄膜的发光效应。随后,Tarekegne 等^[72]利用铌酸锂倾斜波前技术获得电场强度为 3.6 MV/cm 的 THz 脉冲,与金属偶极子天线的局域场增强相结合,研究了硅在 MV/cm 范围内极高电场和低初始载流子浓度下碰撞电离的过程。2020 年,Raab 等^[73]利用来自量子级联激光器的强连续 THz 光束激励由砷化镓组成的量子阱结构,实现了超快可饱和吸收,并揭示了六波混频等相干非线性动力学。2022 年,Heindl 等^[74]利用强场 THz 辐射调控可见光脉冲激发的量子点发光,实现了对量子点发光和远场荧光成像的编码,并获得了时域内 THz 近场的波形成像图案,为进一步获取强激光脉冲对凝聚态系统中电荷运动和准粒子激发的时间特征提供了新方案。

随着强场 THz 辐射与物质相互作用研究的深入,THz 光场对量子材料的调控获得了前所未有的发展,并为进一步实现强场 THz 辐射诱导绝缘体向金属转变提供了可能性。2012 年,Liu 等^[75]将基于铌酸锂倾斜波前技术获得的场强约为 300 kV/cm 的单周期强场 THz 脉冲与超材料的局域场增强效应相结合,在衬底 VO₂ 上制备了劈裂共振环结构,在 1.5 μm 的开口环的间隙中诱导实现绝缘体 VO₂ 向金属的相变过程。2014 年,Matsunaga 等^[76]利用强场 THz 光场诱导 NbN 中超导序参量的振荡,最终观察到超导体在临界磁场或者临界温度附近表现出高度非线性效应。同时,他们预言利用赝自旋和光场之间的非线性耦合,THz 抽运-探测的方案可以应用于非常规超导体中研究物质与光场的相互作用机理。

2017 年,Zhu 等^[77]在超材料增强的 THz 场激发下,在铁电体 BaTiO₃ 薄膜的一个纳米级体积内选择性地激励低频声子,并利用实时空间时间分辨 X 射线衍射显微镜对弹道声子在数百纳米距离上的传输过程进行成像。次年,Reimann 等^[78]提出具有亚周期分辨率的角分辨光电子能谱(ARPES)方案,实现了强场 THz 波对 Bi₂Te₃ 拓扑表面态能带结构中狄拉克费米子加速产生电流的直接观察,这一研究为分析能带结构中的亚周期循环分辨率提供了便利。2019 年,Li 等^[79]在强 THz 电场的激发下,实现了动态诱导钛酸

锶(SrTiO₃)由顺电相到隐藏铁电相的转变。同年,Shi 等^[80]利用铌酸锂倾斜波前技术获得约 0.3 MV/cm 的 THz 脉冲,与场增强效应结合,在单层和双层的二维过渡金属化合物 MoTe₂ 中诱导了从半导体六方相到拓扑绝缘体扭曲八面体的不可逆相变。这项研究为将来利用 THz 辐射控制二维层状材料的相变奠定了基础。

2020 年,Kovalev 等^[81]利用线性极化多周期 THz 脉冲诱导三维狄拉克半金属 Cd₃As₂ 产生了高次谐波。同年,Shi 等^[82]利用单周期强场 THz 脉冲在室温情况下驱动单层半导体过渡金属 MoS₂ 失去平衡,从而引发激子共振并表现出激子线型大幅拓宽,进一步导致发生电吸收反应,并瞬间随 THz 场的变化而变化。2021 年,Schmid 等^[83]利用可调谐中心频率的多周期 THz 脉冲在三维拓扑绝缘体 Bi₂Te₃ 中产生了高次谐波,并且高次谐波的光谱由金属表面态的贡献进行控制,从而产生偶次和奇次谐波。

除了强场 THz 辐射的电场分量对电子电荷的调控进而影响材料的性质外,利用强 THz 辐射的磁场和电场也可以对电子自旋进行调控。2016 年,Bonetti 等^[84]采用峰值场强为 60 MV/m 的单周期强场 THz 脉冲激发薄膜铁磁体晶体铁和非晶体钴铁硼,并用飞秒磁光克尔效应在非晶体钴铁硼中探测到超快退磁现象,该现象是由 THz 辐射诱导的超快自旋流的自旋晶格去极化而引起的。这一工作证明了利用强场 THz 辐射诱导超快退磁比光学诱导退磁更快。2019 年,Schlauderer 等^[85]将峰值场强可达 1 MV/cm 的强场 THz 辐射与金属天线结构的局域场增强效应相结合,在强场 THz 辐射突然激发反铁磁体 TmFeO₃ 引起磁各向异性发生改变时,引发一系列的弹道自旋运动。同年,Mashkovich 等^[86]采用电场强度为 0.5 MV/cm 的 THz 脉冲,共振激发弱反铁磁体 FeBO₃ 中的高、低频准铁磁自旋共振模式发生 GHz 自旋共振,从而观察到克顿-莫顿效应。在前期强场 THz 辐射诱导铁磁体实现超快退磁研究的基础上,Chekhov 等^[87]于 2021 年研究了光脉冲与 THz 脉冲激发铁磁体后引起的超快退磁现象。同年,Mashkovich 等^[88]利用 THz 脉冲驱动反铁磁体二氟化钴(CoF₂)中的相干磁子状态发生共振,并激发拉曼活性 THz 声子,研究了从 THz 磁子到 THz 声子自旋与晶格耦合的非线性机制。

此外,将强场 THz 辐射作用于有机大分子时,也可以激发一系列物理现象。2019 年,Damari 等^[89]利用峰值场强为 50 kV/cm 的单周期 THz 脉冲研究 α -乳糖晶体中分子间的强耦合性,结果显示 α -乳糖晶体和法布里-珀罗谐振腔在低 THz 频率处发生强耦合,并观察到基频约 13% 的拉比分裂,在耦合系统中发生了相干真空拉比振荡。2020 年,Peller 等^[90]利用由耦合到扫描隧道显微镜金属尖端的强场 THz 脉冲的振荡载波施加一个机械力,从而在吸附于氯化钠薄膜氯位点上的酞菁镁(MgPc)分子构成的单分子开关中诱

导了分子的相干阻碍旋转,并预言利用这种方案可以连贯操纵单个分子或者固体中的单个原子。

在以上的各项研究工作中,场强足够的 THz 脉冲

在实现对物质的动态调控中起到了至关重要的作用。表 1 列举了以上将强场 THz 辐射应用于半导体、量子材料、磁性材料等方面的应用情况。

表 1 基于铌酸锂倾斜波前技术产生强场 THz 辐射在物态调控领域中的应用情况

Table 1 Application of strong-field THz generation based on lithium niobate tilted pulse front technique to matter modulation field

Year	Researchers	Field strength / (kV·cm ⁻¹)	Publication	Ref.
2009	Hoffmann et al.	100	Physical Review B	[69]
2009	Hoffmann et al.	150	Journal of the Optical Society of America B	[70]
2012	Liu et al.	300	Nature	[75]
2014	Matsunaga et al.	4	Science	[76]
2016	Bonetti et al.	60	Physical Review Letters	[84]
2017	Pein et al.	320	Nano Letters	[71]
2017	Tarekegne et al.	3.6×10 ³	New Journal of Physics	[72]
2017	Zhu et al.	200	Physical Review Materials	[77]
2018	Reimann et al.	2	Nature	[78]
2019	Li et al.	550	Science	[79]
2019	Damari et al.	50	Nature Communications	[89]
2019	Shi et al.	300	arXiv	[80]
2019	Schlauderer et al.	1.0×10 ³	Nature	[85]
2019	Mashkovich et al.	500	Physical Review Letters	[86]
2020	Kovalev et al.	140	Nature Communications	[81]
2020	Shi et al.	420	Nano Letters	[82]
2020	Raab et al.	55	Nature Communications	[73]
2020	Peller et al.	-	Nature	[90]
2021	Schmid et al.	3.0×10 ³	Nature	[83]
2021	Chekhov et al.	1.0×10 ³	Physical Review X	[87]
2021	Mashkovich et al.	1.0×10 ³	Science	[88]
2022	Heindl et al.	400	Light: Science & Applications	[74]

在将 THz 辐射引入光与物质相互作用的研究过程中,利用铌酸锂倾斜波前技术产生强场 THz 辐射起到了重要的作用。随着这一技术逐渐趋于成熟,我们可以获得峰值场强更高的 THz 辐射,并对物质的非平衡态进行调控,但是这些研究仍只是冰山一角。目前,THz 辐射与物质相互作用的发展仍受到强场 THz 源的限制,想要实现强场 THz 辐射对物质非平衡态进行全面系统的调控需要进一步对强场 THz 源进行开发。

6.2 强场 THz 电子加速与操控

电子加速器在科学前沿和工业应用方面发挥着重要作用。电子加速器的核心是利用电场快速将电子从静止状态加速,以避免空间电荷效应引起束流衰减。然而传统射频加速器由于金属材料击穿阈值的限制,最大加速梯度有上限,使得加速过程必须经历很长的加速距离,体积大,成本高。射频加速器与激光同步也比较复杂,限制了它的时间分辨率。探索更加小型化、

更高加速梯度、更小时间分辨率的新型电子加速方式至关重要。

在此基础上,有很多的新型电子加速器结构被提出,如激光驱动介质波导加速器、激光等离子体加速器以及 THz 辐射驱动的电子加速器等。介质波导加速器受限于微米级结构,只能加速在亚飞库伦范围内的电子束,电荷量低,公差大;激光等离子体加速器虽然可以实现 200 MV/m 的强电场加速,但由于等离子体结构的不稳定性,工作稳定性低且重复性低。近年来随着强场 THz 光源技术的快速发展,采用 THz 脉冲的波长和频率优势,THz 辐射驱动的电子加速器不仅能够提高加速结构击穿阈值,产生较大的加速梯度,同时能够适用于具有大电荷量的电子束加速。与其他新型加速结构相比,THz 电子加速可兼具稳定性高、电荷容量大、结构简单紧凑等优点。用于激发电子加速的 THz 脉冲和诱导电子产生的紫外脉冲能够由同一

束激光产生,具有较好的时间同步能力,能够实现较高的时间分辨率。这些优势都使得 THz 辐射驱动的电

子加速方案具有极好的研究前景。图 10 为强场 THz 电子加速与操控及其应用示意图。

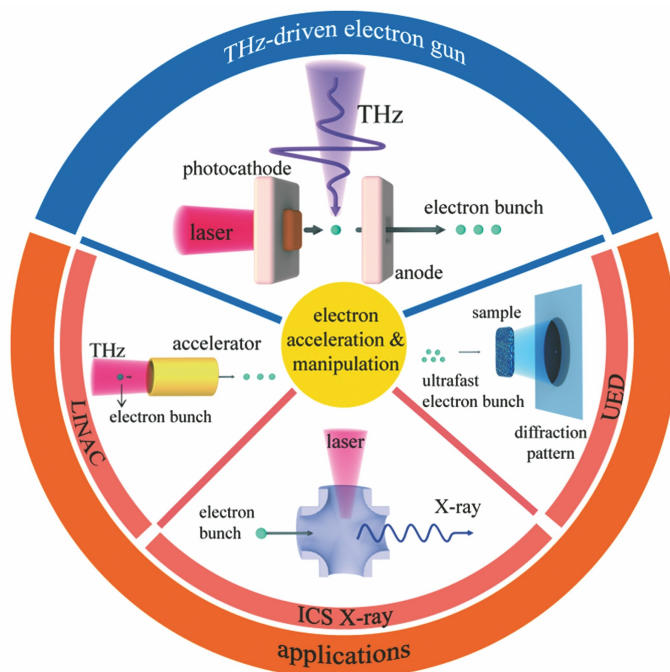


图 10 强场 THz 电子加速与操控及其应用的示意图

Fig. 10 Schematic diagram of strong-field THz electron acceleration and manipulation and its applications

THz 电子加速的概念早在 2014 年由德国哥廷根大学的 Wimmer 教授研究组^[91]提出,他们在纳米结构中利用局域场增强 THz 辐射的方法来控制纳米尺度上的电子流,得到的局域 THz 峰值场强高达 0.9 GV/cm,实现了对近红外脉冲诱导纳米材料产生的光电流的开闭控制。2015 年,麻省理工学院和德国电子加速器中心(DESY)的 Kärtner 教授组 Nanni 等^[92]利用掺杂了 1% MgO 的铌酸锂晶体,产生了中心频率 0.45 THz 的 10 μ J 单周期 THz 脉冲,将其耦合到 3 mm 长的圆形波导管内对电子进行加速,最终观察到了 7 keV 的能量增益。后来该团队证明了用 THz 辐射从宏观结构中加速电子的可能性。被加速的电子通过双光子电离在光电阴极上发射,利用通过平行板波导增强得到的峰值电场为 72 MV/m、频率为 1 kHz 的微焦级 THz 脉冲,最终将 50 fC 的电子束从静止加速,实现了高达 100 keV 的单能电子^[93]。该实验中的 THz 脉冲是在低温铌酸锂中利用倾斜波前技术,由近红外脉冲通过光学整流的方式产生的。THz 脉冲的能量转化效率约为 1%,所测脉冲的载频为 0.45 THz,半高宽为 0.4 THz。在此基础上,2016 年 Huang 等^[94]采用平行板波导的形式,设计了一款全光驱动的 THz 电子枪,在波导的光电阴极上通过紫外光激发产生光电子,将单周期的 THz 脉冲通过喇叭开口耦合进平行板波导内部,实现了高达 300 MV/m 的加速电场,被加速的电子能达到 1 keV 的峰值能量,加速后的电子最终通过波导顶板上的阳极狭缝飞出。除此之外,在 2020 年, Hibberd 等^[95]利用窄带、频率和偏

振可调的 THz 脉冲激发矩形石英介质波导,实现了亚相对论的电子线性加速,提供了一种阿秒分辨率的测量方法,为研究关于等离子体中光场诱导的电子动力学提供了直接证据。

除了通过设计波导结构耦合 THz 波实现对电子相空间的加速和控制,还可以设计光在波导内部与电子的压缩、聚焦等相互作用模式。在 2016 年 Kealhofer 等^[96]设计了一种微结构的谐振腔,将电子脉冲压缩至原来的 1/12,基于非线性光学的原理从单个超快激光器获得的 THz 脉冲可以实现近乎完美的时间同步(亚飞秒),展现了显著的激光同步潜力。2018 年 Curry 等^[97]使用弯曲的平行板波导使得相对论电子束实现了束长压缩,并在能量为 1 μ J、峰值电场 <10 MV/m 的 THz 脉冲下实现了能量为 150 keV 的高能电子。随后在 2020 年, Snively 等^[98]采用单周期 THz 脉冲在短平行板结构中将动能为 2.5 MeV 的相对论电子束压缩至原来的 1/3,并减少了一半以上的时间抖动,在束流性能方面为超快电子衍射等应用提供了显著的改进。2018 年赵凌荣(Zhao)等^[99]利用 THz 条纹相机技术用 1.5 fs 的精度确定了 6 fs 的超短电子束的到达时间,提出并演示了一种通过测量压缩束流能量的方法,来实现高精度的时间抖动校正,可能使超快电子衍射向 10 fs 以下的边界推进,远远超过 100 fs 的抖动范围。基于此,他们在 2019 年实现了一种能够记录超短电子束时间信息的 THz 示波器,通过将激光驱动的圆极化 THz 脉冲注入介质管中,最终可以表征电子束的时间轮廓和时间抖动^[100]。2020 年周

楚亮(Zhou)等^[101]同样利用 THz 条纹技术完成了对亚皮秒量级电子束的线性加速,可以实现对电子束的空间、时间和能量的精确控制。虽然以上研究的原理验证实验在计算电子电荷、光束质量、能量增益和扩散方面的作用有一定限制,但是也为开发更加小型、紧凑的 THz 电子加速设备奠定了理论基础。

在以上研究的基础上,张东方(Zhang)等^[102]基于矩形介质板设计了一种分段的 THz 电子脉冲加速器,能够利用 THz 辐射在波导中实现电子加速、压缩、聚焦等功能,并实现几种模式之间的动态切换。这种装置以能量较低的微焦量级单周期 THz 脉冲加速电子,最终观察到了大于 30 keV 的电子能量增益。该设计结构前后经过两次设计,在 2019 年实现了对电子束能量和能量发散度的控制和测量^[103];紧接着又通过回收 THz 能量,大大提高了 THz 辐射和电子之间的能量转移效率,实现了 MeV 范围内的电子加速^[104]。

目前,还有一种基于多级级联的电子加速方案。2021 年, Tang 等^[57]利用多周期 THz 脉冲驱动的对论电子束在连续圆形介质波导中实现了电子的稳定加速,由 20 个周期的 THz 脉冲驱动两个阶段的相对论性电子束持续稳定的整束加速,最终使得每个模块的能量增益约为 15 keV。2021 年清华大学的胥汉勋(Xu)等^[105]基于圆形介质波导减缓了由单周期相干跃

迁辐射 THz 脉冲激发的行进 TM_{01} 场,达到的峰值场强为 1.1 GV/m,最大加速梯度为 85 MV/m,最终实现了 204 keV 的电子能量增益。

以上研究大多基于铈酸锂倾斜波前技术的强场 THz 光源。还需要更高能量的 THz 脉冲,以更高的加速梯度实现对电子的加速与操控,才能获得更加紧凑、更高加速梯度的 THz 电子加速器,在超快电子衍射和超快 X 射线光谱与成像应用中发挥重要作用。

6.3 强场 THz 生物学效应

THz 频段因其非电离辐射以及对水含量灵敏度高的特性,已经在生物医疗领域得到了广泛的关注,在癌症早期筛查和烧伤等疾病的诊断中的应用已经有了很多报道^[106-107]。由于大多数与生命相关的生物分子的骨架振动频率低,对应 THz 频段^[108],随着 THz 源的发展和场强的不断提升,越来越多的科研工作者投身于强场 THz 辐射与生物组织的相互作用。图 11 是强场 THz 辐射与不同尺度的生物组织相互作用的总结概念图。现有研究表明,强场 THz 共振会使得 DNA 碱基对断裂,促进 DNA 实现解缠绕,还会导致蛋白质变性,二级结构发生改变。利用强场 THz 辐射辐照细胞,发现细胞膜通透性发生改变,加速离子膜间运动。随着强场 THz 源性能的进一步提高,未来有望将 THz 频段应用在人类疾病的干预和治疗中。

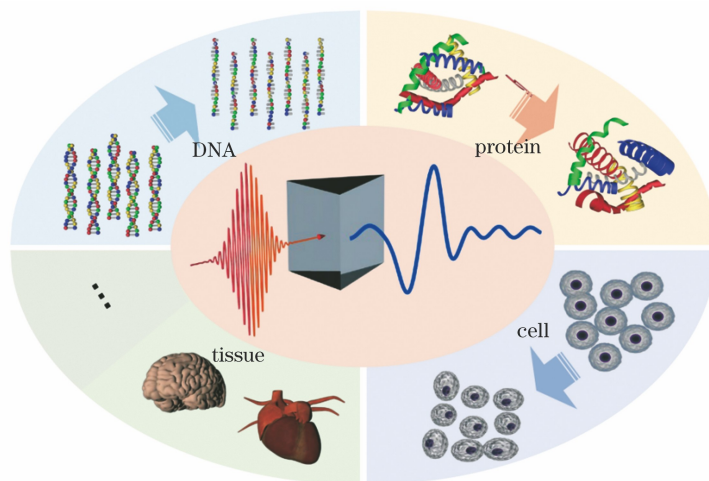


图 11 强场 THz 辐射在不同尺度下的生物学效应的示意图

Fig. 11 Schematic diagram of biological effects of strong-field THz radiation at different scales

核酸的碱基序列和构象结构易受到核酸碱基对氢键和非共价键相互作用产生的低频分子运动的影响,因此可利用 THz 辐射改变 DNA 双链(dsDNA)结构以及蛋白质性质。2019 年 Greschner 等^[109]证实,微波和 THz 电磁辐射可影响溶液中 DNA 的构象。微波促进 DNA 纳米结构和质粒 DNA(pDNA)的修复和组装,而强场 THz 脉冲(频率范围 0.1~3 THz,峰值频率 0.9 THz,重复频率 2.5 kHz,峰值电场约 70 kV/cm)诱导短 dsDNA 的快速解离。这两种效应在室温下,以长度依赖的方式迅速发生,且不添加化学剂(变性剂等)。有趣的是,用来激活 DNA 的辐射条

件并没有影响蛋白质的功能。这种特殊的细节被利用,以一种自下而上的方式组装混合 DNA-蛋白质纳米结构。2021 年,国防科技创新研究所 THz 生物物理创新实验室常超教授团队 Zhang 等^[110]以 DNA 折纸为模型,研究 THz 波对生物大分子自组装的影响,结果表明 THz 辐射可以促进蛋白质结构的组装。由于吡啶基的振动引起的共振,THz 辐射可能会促进 DNA 碱基对之间的氢键断裂,从而有助于在低于其熔化温度的动力学陷阱中打开不需要的 DNA 结构,实现正确的组装路径。在峰值温度为 60 °C 的 THz 辐照(照射 3 min)下,能够高产量地合成各种 DNA 折纸结

构。具有特定形状的DNA折纸结构可以作为宽频辐射计,以可视的方式测量不同区域的电磁辐射。DNA折纸辐射计提供了一种定量测量辐射对生物分子和生命系统影响的方法。

除此之外,还需研究强场THz辐射在亚细胞层面的相互作用机制。2020年,俄罗斯Nemova教授等^[111]采用自旋捕获和自旋探针技术,利用顺磁共振波谱技术研究了THz辐射对牛血清白蛋白(BSA)功能活性的影响。将牛血清白蛋白用THz辐射(频率范围0.2~1.5 THz,峰值功率密度10 mW/cm²,平均功率密度10 nW/cm²)照射60 min,发现蛋白的紫外光谱和圆二色谱发生了变换,这是由于BSA构象的修饰。BSA212色氨酸荧光的增加和黄体酮结合常数的大幅下降进一步证实了这一点。他们推断,白蛋白薄膜制剂在THz辐射的照射下会导致白蛋白反应中心的氧吸附增加和白蛋白与一氧化氮的结合减弱。强场THz辐射还会改变机动蛋白聚合的调制和其丝状稳定性^[112]。微管等丝状蛋白复合物是调节多种生物功能的基本细胞骨架结构,是细胞或组织水平上观察到的THz诱导效应的基础上的THz相互作用的重要靶点。抑制微管动力学是抗癌药物临床应用的一个机制,微管网络的破坏可能是强THz脉冲潜在的治疗机制。2021年,加拿大艾伯塔大学埃德蒙顿分校的Hough教授等^[113]利用铌酸锂强场研究发现,微管的分解效率不仅与THz辐射的场强相关,还与其频率相关,低频的THz辐射具备更高的微管拆解能力。

THz辐射与细胞的相互作用也受到了广泛的关注。大量数据表明THz辐射会影响细胞的基因表达,细胞膜的通透性,细胞代谢、形态、增值等。2015年,俄罗斯瓦维洛夫普通遗传学研究所Bogomazova教授等^[114]将人胚胎干细胞置于THz脉冲辐射下1 h,THz辐射的中心频率为2.3 THz,峰值辐照度为4 kW/cm²,平均辐照度为0.14 W/cm²。全基因组分析显示了73个基因的表达改变,而其中只有1个基因对多能性状态有特异性。作者认为,暴露在THz辐射下的人类胚胎干细胞没有DNA损伤反应和可忽略的全基因组转录变化。时隔5年,日本神奈川东海大学的Tachizaki教授等^[115]将人诱导多能干细胞(hiPSCs)置于中心频率为0.8 THz、电场强度为0.5 MV/cm的脉冲THz辐射中,并控制温升仅约为0.3 mK,避免触发热休克蛋白的表达。对整体基因表达的RNA测序显示,许多THz辐射调节的基因由锌指转录因子驱动。他们推测,THz脉冲电场在非热环境下诱导了基因表达,这可能是锌离子在细胞内的运动引起的。由此可见,随着强场THz光源技术的发展,更深层次的生物学效应正在逐步被发现。

在生物个体层面也有研究证明THz辐射会影响生理过程。将活体小鼠耳皮肤暴露于中心频率为2.7 THz、脉冲重复频率为3Hz、脉冲持续时间为

4 μs、平均辐照度为260 mW/cm²的脉冲辐射中30 min,发现小鼠耳部皮肤有明显的急性炎症反应(中性粒细胞浸润),而红外摄像机没有检测到明显的温度变化,表明这种急性炎症是由于THz电场或磁场引起的,而不是由于THz辐射的热效应引起的^[116-117]。该研究进一步说明,虽然人体水分含量高会阻碍THz辐射的深度,但是THz辐射仍然可以穿透一定厚度的皮肤组织,有望利用强场THz辐射干预和治疗皮肤疾病。

目前,THz辐射与生物之间的相互作用机理仍受限于THz源的缺乏。由于连续波THz辐射会导致生物样品的温升,产生的生物学效应无法排除热效应的影响,使得产生的结果无法证实是由THz辐射独特的频率引起的。因此,为了进一步研究THz辐射生物学效应,迫切需要峰值功率更高的脉冲THz源。低重复频率的THz辐射源可以有效控制生物样品在实验过程中温度的改变。现有研究表明,THz辐射可以作为一种非接触控制基因表达和调节细胞分化的潜在工具。但是由于现有的脉冲THz源的场强低,为了诱导生物学效应不得不长时间辐照生物样品,在实验过程中会一定程度上影响生物样品的活性。因此,开发强场THz源可以进一步促进THz生物学效应的发展,研究THz辐射对人体的影响。在未来结合THz超表面技术进一步增强THz局域场强,有望将强场THz技术真正应用在疾病的诊断、干预和治疗中。

7 北京航空航天大学强场THz光源与应用研究

北京航空航天大学强场THz光源及其应用研究始于2017年夏,由电子信息工程学院微波工程实验室吴晓君教授领衔。吴晓君教授自2013年开始研究铌酸锂倾斜波前技术,从2013年到2017年,在德国DESY的Kärtner教授团队作为洪堡学者博士后工作期间,为实现全光驱动的THz电子加速器,从铌酸锂倾斜波前理论和实验两个方面开展了系统的研究工作:从辐射机理、饱和效应、耦合输出的科学和技术问题出发深入研究,成功地将超短超强激光抽运铌酸锂晶体产生THz辐射的单脉冲能量从微焦量级提升到了亚毫焦量级(0.13 mJ)^[26,28-29],在该研究方向上积累了扎实的研究基础和实验经验。

吴晓君教授自2017年回国后,为推动铌酸锂强场THz光源及其应用的发展,进一步专注于发展倾斜波前新技术与新方法,期望克服钛宝石激光器超短超强飞秒激光脉冲作用铌酸锂产生THz辐射转化效率较低的科学难题和技术挑战,获得高效率、高光束质量、高稳定性的强场THz输出。为此,在过去的5年里,通过与中国科学院物理研究所和中国科学院上海光学精密机械研究所合作,采用技术成熟的钛宝石激光器抽运大尺寸铌酸锂晶体,克服了超短激光脉冲产生

THz 辐射的有效作用距离短、能量转化效率低、辐射能量易饱和、晶体易损坏等科学难题和技术挑战,揭示了 THz 辐射效率饱和的非线性效应,提出了铌酸锂倾斜波前技术协同补偿能量线性化新机制,先后于 2018 年获得了 4 MV/cm 峰值场强(当时基于铌酸锂产生的自由空间场强最高值),2020 年获得了 1.4 mJ 单脉冲能量输出(当时国际首个单脉冲能量超过 1 mJ 的铌酸锂强 THz 光源),2021 年获得了 13.5 mJ 的单脉冲能量(未发表),获得了国际同行评价为“最强电场、最高单脉冲能量、世界最高效率、世界纪录”的等多个里程碑式成果。简要介绍如下。

(1) 4 MV/cm 峰值场强 THz 辐射。采用中国科学院物理研究所光物理实验室的 70 mJ 飞秒激光器抽运,基于室温铌酸锂晶体,获得了 0.2 mJ 单脉冲能量 THz 辐射输出,将光斑汇聚到约 1 mm 直径(1/e)后,获得 4 MV/cm 的峰值场强^[48]。在此基础上,合作团队对高能激光抽运引起的非线性畸变效应导致 THz 光斑移动和辐射频谱变化等进行了系统的研究^[118]。

(2) 1.4 mJ 脉冲能量铌酸锂 THz 强源。通过对晶体进行液氮冷却,在 215 mJ, 30 fs 商用钛宝石激光抽运下获得了单脉冲能量 1.4 mJ 的 THz 辐射,能量转化效率高达 0.7%。根据实测的单脉冲能量、脉冲宽度和光斑尺寸等参数,聚焦 THz 峰值电场高达 6.3 MV/cm(超越 2018 年的世界纪录 4 MV/cm),峰值磁场为 2.1 T^[34]。该工作将铌酸锂 THz 强源的单脉冲能量、转化效率、峰值能量等多个指标进一步提升。

(3) 13.5 mJ 铌酸锂超强 THz 光源。面向后摩尔新材料 THz 物态调控前瞻应用,进一步与中国科学院上海光学精密机械研究所合作,采用 200 TW 超短超强激光脉冲抽运超大尺寸铌酸锂晶体产生强场 THz 辐射,在 1.2 J 钛宝石超短激光脉冲抽运下,获得了单

脉冲能量 13.5 mJ 的高能 THz 输出,能量转化效率为 1.2%。相对于 2020 年产生的 1.4 mJ 单脉冲能量,这个结果实现了一个数量级的提升,是目前世界最强铌酸锂 THz 光源。通过对该 THz 辐射的聚焦验证,获得了高质量近圆形光斑,计算得到的自由空间峰值场强超过 20 MV/cm。利用该超强 THz 光源,为极端 THz 新材料物态调控应用提供了高稳定性、高光束质量的强 THz 源。

(4) THz 非线性纳米超表面。提出并制备了一类新的 THz 纳米结构,将强 THz 脉冲耦合到 15 nm 缝隙($\lambda/33000$)的 THz 超表面中。在极为有限的空间区域,利用超表面的谐振能力和纳米缝隙的极强局域场增强效应,激发衬底硅产生碰撞电离,实现了在纳米尺度探测 THz 非线性的独特方法,研制出频率可精确调控的非线性 THz 超表面器件^[119]。该非线性 THz 超表面与传统非线性 THz 超材料不同之处在于,THz 电磁场在尺寸仅为其波长的 1/33000 的纳米缝隙处获得极强局域场,不会对整个器件产生全局非线性效应。在改变 THz 入射场强时,不会引起器件共振强度的极大变化。这为研究极端 THz 科学、THz 非线性器件提供了新思路。

图 12 展示了北京航空航天大学强场 THz 光源团队在 THz 强源产生与应用方面的代表性成果。在以上各项工作中,铌酸锂强场 THz 光源起到了至关重要的作用。该方向未来的发展,一方面需要从理论上提出更合理的相位匹配方案,进一步提高辐射效率;另一方面在结构设计上,要找到可以克服非共线相位匹配引入的技术难度的结构。未来将进一步拓展强场 THz 光源的应用场景,期望它为物理、化学、材料、生物、国防、天文、加速器等交叉领域做出更大更重要的贡献。

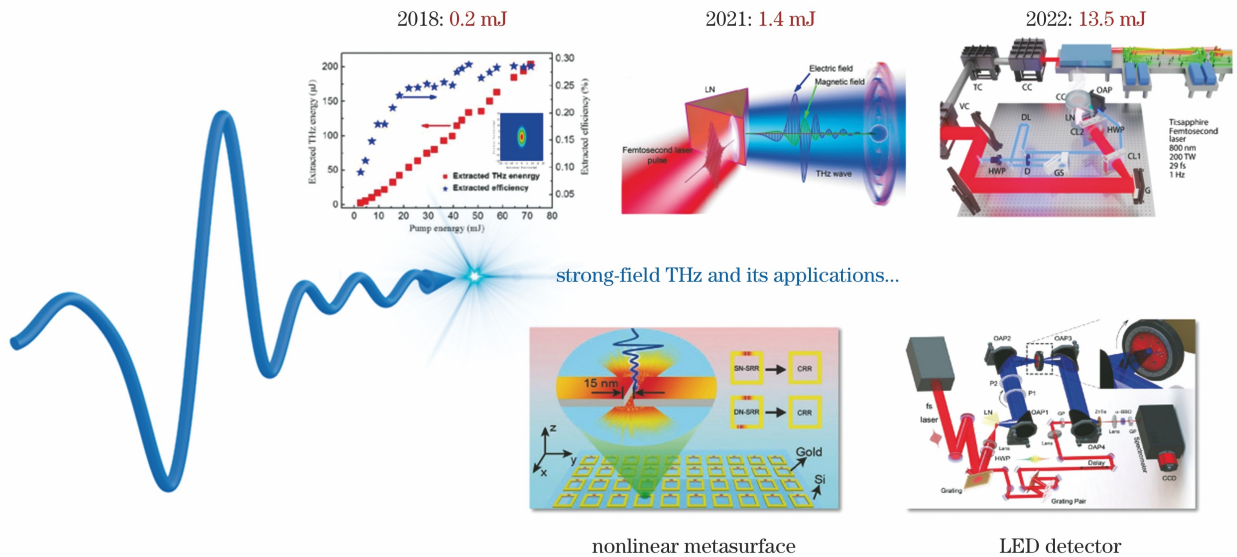


图 12 北京航空航天大学强场 THz 光源团队在强源产生及其应用方面的重要进展示意图

Fig. 12 Schematic diagram of important progress made by strong-field THz team of Beihang University in generation and application of strong sources

8 结束语

本文针对强场 THz 辐射在物态调控、电子加速、生物医疗等领域具有的前瞻性应用缺乏高效率、高光束质量、高稳定性强源的研究现状,综述了铌酸锂倾斜波前技术的历史沿革、理论模型、实验进展、应用实例,以及北京航空航天大学强场 THz 光源团队及其合作团队在该方面取得的一些成果,展望了未来极端 THz 科学与应用及其多学科交叉将带来的前所未有的新挑战与新机遇。

参 考 文 献

- [1] Lee Y S. Principles of terahertz science and technology [M]. New York: Springer, 2009.
- [2] Elsässer T, Reimann K, Woerner M. Concepts and applications of nonlinear terahertz spectroscopy [M]. San Rafael: Morgan & Claypool Publishers, 2019.
- [3] Fülöp J A, Tzortzakis S, Kampfrath T. Laser-driven strong-field terahertz sources [J]. *Advanced Optical Materials*, 2020, 8(3): 1900681.
- [4] 谷建强, 王可蒙, 许祎, 等. 基于超材料的太赫兹光电导天线 [J]. *中国激光*, 2021, 48(19): 1914004.
Gu J Q, Wang K M, Xu Y, et al. Metamaterials-based terahertz photoconductive antennas [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(19): 1914004.
- [5] 张骥, 班晓娜, 田宝贤, 等. 相对论飞秒激光与微结构靶相互作用增强太赫兹波产生的数值模拟研究 [J]. *中国激光*, 2022, 49(6): 0614002.
- [6] Zhang J, Ban X N, Tian B X, et al. Simulation of enhanced terahertz wave generation by interaction between relativistic femtosecond laser and microstructure targets [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2022, 49(6): 0614002.
- [6] 李忠洋, 颜钤泽, 张格格, 等. 在极化声子共振区基于级联差频产生高频太赫兹波 [J]. *中国激光*, 2022, 49(7): 0714002.
Li Z Y, Yan Q Z, Zhang G G, et al. High-frequency terahertz wave generation with cascaded difference frequency generation at polariton resonance [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2022, 49(7): 0714002.
- [7] Yang K H, Richards P L, Shen Y R. Generation of far-infrared radiation by picosecond light pulses in LiNbO₃ [J]. *Applied Physics Letters*, 1971, 19(9): 320-323.
- [8] Hebling J, Almási G, Kozma I Z, et al. Velocity matching by pulse front tilting for large area THz-pulse generation [J]. *Optics Express*, 2002, 10(21): 1161-1166.
- [9] Stepanov A G, Hebling J, Kuhl J. Efficient generation of subpicosecond terahertz radiation by phase-matched optical rectification using ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts [J]. *Applied Physics Letters*, 2003, 83(15): 3000-3002.
- [10] Pálfalvi L, Hebling J, Almási G, et al. Nonlinear refraction and absorption of Mg doped stoichiometric and congruent LiNbO₃ [J]. *Journal of Applied Physics*, 2004, 95(3): 902-908.
- [11] Hebling J, Stepanov A G, Almási G, et al. Tunable THz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts [J]. *Applied Physics B*, 2004, 78(5): 593-599.
- [12] Stepanov A G, Kuhl J, Kozma I Z, et al. Scaling up the energy of THz pulses created by optical rectification [J]. *Optics Express*, 2005, 13(15): 5762-5768.
- [13] Yeh K L, Hoffmann M C, Hebling J, et al. Generation of 10 μ J ultrashort terahertz pulses by optical rectification [J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 90(17): 171121.
- [14] Yeh K L, Hebling J, Hoffmann M C, et al. Generation of high average power 1 kHz shaped THz pulses via optical rectification [J]. *Optics Communications*, 2008, 281(13): 3567-3570.
- [15] Stepanov A G, Bonacina L, Chekalin S V, et al. Generation of 30 μ J single-cycle terahertz pulses at 100 Hz repetition rate by optical rectification [J]. *Optics Letters*, 2008, 33(21): 2497-2499.
- [16] Stepanov A G, Henin S, Petit Y, et al. Mobile source of high-energy single-cycle terahertz pulses [J]. *Applied Physics B*, 2010, 101(1): 11-14.
- [17] Fülöp J A, Pálfalvi L, Almási G, et al. Design of high-energy terahertz sources based on optical rectification [J]. *Optics Express*, 2010, 18(12): 12311-12327.
- [18] Hirori H, Doi A, Blanchard F, et al. Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO₃ [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 98(9): 091106.
- [19] Hebling J, Yeh K L, Hoffmann M C, et al. High-power THz generation, THz nonlinear optics, and THz nonlinear spectroscopy [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2008, 14(2): 345-353.
- [20] Hirori H, Nagai M, Tanaka K. Excitonic interactions with intense terahertz pulses in ZnSe/ZnMgSSe multiple quantum wells [J]. *Physical Review B*, 2010, 81(8): 081305.
- [21] Hebling J, Hoffmann M C, Hwang H Y, et al. Observation of nonequilibrium carrier distribution in Ge, Si, and GaAs by terahertz pump-terahertz probe measurements [J]. *Physical Review B*, 2010, 81(3): 035201.
- [22] Fülöp J A, Pálfalvi L, Hoffmann M C, et al. Towards generation of mJ-level ultrashort THz pulses by optical rectification [J]. *Optics Express*, 2011, 19(16): 15090-15097.
- [23] Fülöp J A, Pálfalvi L, Klingebiel S, et al. Generation of sub-mJ terahertz pulses by optical rectification [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(4): 557-559.
- [24] Fülöp J A, Ollmann Z, Lombosi C, et al. Efficient generation of THz pulses with 0.4 mJ energy [J]. *Optics Express*, 2014, 22(17): 20155-20163.
- [25] Ravi K, Huang W R, Carbajo S, et al. Limitations to THz generation by optical rectification using tilted pulse fronts [J]. *Optics Express*, 2014, 22(17): 20239-20251.
- [26] Wu X J, Carbajo S, Ravi K, et al. Terahertz generation in lithium niobate driven by Ti:sapphire laser pulses and its limitations [J]. *Optics Letters*, 2014, 39(18): 5403-5406.
- [27] Ravi K, Huang W R, Carbajo S, et al. Theory of terahertz generation by optical rectification using tilted-pulse-fronts [J]. *Optics Express*, 2015, 23(4): 5253-5276.
- [28] Wu X J, Zhou C, Huang W R, et al. Temperature dependent refractive index and absorption coefficient of congruent lithium niobate crystals in the terahertz range [J]. *Optics Express*, 2015, 23(23): 29729-29737.
- [29] Wu X J, Calendron A L, Ravi K, et al. Optical generation of single-cycle 10 MW peak power 100 GHz waves [J]. *Optics Express*, 2016, 24(18): 21059-21069.
- [30] Li B, Zhang W Y, Liu X Q, et al. Chromatic effect for THz generation in a novel wave-front tilt scheme [EB/OL]. (2016-10-20) [2021-06-05]. <https://arxiv.org/abs/1610.06493>.
- [31] Pálfalvi L, Ollmann Z, Tokodi L, et al. Hybrid tilted-pulse-front excitation scheme for efficient generation of high-energy terahertz pulses [J]. *Optics Express*, 2016, 24(8): 8156-8169.
- [32] Ofori-Okai B K, Sivarajah P, Huang W R, et al. THz generation using a reflective stair-step echelon [J]. *Optics Express*, 2016, 24(5): 5057-5068.
- [33] Jang D, Sung J H, Lee S K, et al. Generation of 0.7 mJ multicycle 15 THz radiation by phase-matched optical rectification in lithium niobate [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(13): 3617-3620.
- [34] Zhang B L, Ma Z Z, Ma J L, et al. 1.4-mJ high energy terahertz radiation from lithium niobates [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2021, 15(3): 2000295.
- [35] Guiramand L, Nkeck J E, Ropagnol X, et al. Near-optimal

- intense and powerful terahertz source by optical rectification in lithium niobate crystal[J]. *Photonics Research*, 2022, 10(2): 340-346.
- [36] Hebling J, Yeh K L, Hoffmann M C, et al. Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2008, 25(7): B6-B19.
- [37] Bartal B, Kozma I Z, Stepanov A G, et al. Toward generation of μJ range sub-ps THz pulses by optical rectification [J]. *Applied Physics B*, 2007, 86(3): 419-423.
- [38] Kleinman D, Auston D. Theory of electrooptic shock radiation in nonlinear optical media [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1984, 20(8): 964-970.
- [39] Bakunov M I, Bodrov S B, Tsarev M V. Terahertz emission from a laser pulse with tilted front: phase-matching versus Cherenkov effect [J]. *Journal of Applied Physics*, 2008, 104(7): 073105.
- [40] Bakunov M I, Bodrov S B, Mashkovich E A. Terahertz generation with tilted-front laser pulses: dynamic theory for low-absorbing crystals[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2011, 28(7): 1724-1734.
- [41] Vodopyanov K L. Optical generation of narrow-band terahertz packets in periodically inverted electro-optic crystals: conversion efficiency and optimal laser pulse format [J]. *Optics Express*, 2006, 14(6): 2263-2276.
- [42] Hattori T, Takeuchi K. Simulation study on cascaded terahertz pulse generation in electro-optic crystals [J]. *Optics Express*, 2007, 15(13): 8076-8093.
- [43] Jewariya M, Nagai M, Tanaka K. Enhancement of terahertz wave generation by cascaded $\chi^{(2)}$ processes in LiNbO_3 [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2009, 26(9): A101-A106.
- [44] Ravi K, Kärtner F. Analysis of terahertz generation using tilted pulse fronts [J]. *Optics Express*, 2019, 27(3): 3496-3517.
- [45] Wang L, Kroh T, Matlis N H, et al. Full 3D+1 modeling of the tilted-pulse-front setups for single-cycle terahertz generation [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2020, 37(4): 1000-1007.
- [46] Bakunov M I, Bodrov S B. Full 3D+1 modeling of tilted-pulse-front setups for single-cycle terahertz generation: comment [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2021, 38(9): 2587-2589.
- [47] Bodrov S B, Murzanev A A, Sergeev Y A, et al. Terahertz generation by tilted-front laser pulses in weakly and strongly nonlinear regimes [J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 103(25): 251103.
- [48] Wu X J, Ma J L, Zhang B L, et al. Highly efficient generation of 0.2 mJ terahertz pulses in lithium niobate at room temperature with sub-50 fs chirped Ti:sapphire laser pulses [J]. *Optics Express*, 2018, 26(6): 7107-7116.
- [49] Tóth G, Pálfalvi L, Turnár S, et al. Performance comparison of lithium-niobate-based extremely high-field single-cycle terahertz sources [J]. *Chinese Optics Letters*, 2021, 19(11): 111902.
- [50] Pálfalvi L, Hebling J, Kuhl J, et al. Temperature dependence of the absorption and refraction of Mg-doped congruent and stoichiometric LiNbO_3 in the THz range [J]. *Journal of Applied Physics*, 2005, 97(12): 123505.
- [51] Sutherland R L, McLean D G, Kirkpatrick S. *Handbook of nonlinear optics* [M]. 2nd ed. New York: Marcel Dekker, 2003.
- [52] Hebling J. Derivation of the pulse front tilt caused by angular dispersion [J]. *Optical and Quantum Electronics*, 1996, 28(12): 1759-1763.
- [53] Wang L, Tóth G, Hebling J, et al. Tilted-pulse-front schemes for terahertz generation [J]. *Laser and Photonics Reviews*, 2020, 14(7): 2000021.
- [54] Deiterding R, Glowinski R, Oliver H, et al. A reliable split-step Fourier method for the propagation equation of ultra-fast pulses in single-mode optical fibers [J]. *Journal of Lightwave Technology*, 2013, 31(12): 2008-2017.
- [55] Balac S, Mahé F. Embedded Runge-Kutta scheme for step-size control in the interaction picture method [J]. *Computer Physics Communications*, 2013, 184(4): 1211-1219.
- [56] Fallahi A. Terahertz acceleration technology towards compact light sources [C] // 2021 34th International Vacuum Nanoelectronics Conference (IVNC), July 5-9, 2021, Lyon, France. New York: IEEE Press, 2021.
- [57] Tang H, Zhao L R, Zhu P F, et al. Stable and scalable multistage terahertz-driven particle accelerator [J]. *Physical Review Letters*, 2021, 127(7): 074801.
- [58] Chen Z, Zhou X B, Werley C A, et al. Generation of high power tunable multicycle terahertz pulses [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 99(7): 071102.
- [59] Tian Q L, Xu H X, Wang Y, et al. Efficient generation of a high-field terahertz pulse train in bulk lithium niobate crystals by optical rectification [J]. *Optics Express*, 2021, 29(6): 9624-9634.
- [60] Siders C W, Siders J L, Taylor A J, et al. Efficient high-energy pulse-train generation using a 2nd-pulse Michelson interferometer [J]. *Applied Optics*, 1998, 37(22): 5302-5305.
- [61] Zhang B L, Wu X J, Wang X, et al. Efficient multicycle terahertz pulse generation based on the tilted pulse-front technique [J]. *Optics Letters*, 2022, 47(11): 2678-2681.
- [62] Ahr F, Jolly S W, Matlis N H, et al. Narrowband terahertz generation with chirped-and-delayed laser pulses in periodically poled lithium niobate [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(11): 2118-2121.
- [63] Carbajo S, Schulte J, Wu X J, et al. Efficient narrowband terahertz generation in cryogenically cooled periodically poled lithium niobate [J]. *Optics Letters*, 2015, 40(24): 5762-5765.
- [64] Jolly S W, Matlis N H, Ahr F, et al. Spectral phase control of interfering chirped pulses for high-energy narrowband terahertz generation [J]. *Nature Communications*, 2019, 10(1): 2591.
- [65] Lemery F, Vinatier T, Mayet F, et al. Highly scalable multicycle THz production with a homemade periodically poled macrocrystal [J]. *Communications Physics*, 2020, 3: 150.
- [66] Tian W L, Cirmi G, Olgun H T, et al. μJ -level multi-cycle terahertz generation in a periodically poled Rb:KTP crystal [J]. *Optics Letters*, 2021, 46(4): 741-744.
- [67] Hamazaki J, Ogawa Y, Kishimoto T, et al. Conversion efficiency improvement of terahertz wave generation laterally emitted by a ridge-type periodically poled lithium niobate [J]. *Optics Express*, 2022, 30(7): 11472-11478.
- [68] Kampfrath T, Tanaka K, Nelson K A. Resonant and nonresonant control over matter and light by intense terahertz transients [J]. *Nature Photonics*, 2013, 7(9): 680-690.
- [69] Hoffmann M C, Hebling J, Hwang H Y, et al. Impact ionization in InSb probed by terahertz pump-terahertz probe spectroscopy [J]. *Physical Review B*, 2009, 79(16): 161201.
- [70] Hoffmann M C, Hebling J, Hwang H Y, et al. THz-pump/THz-probe spectroscopy of semiconductors at high field strengths [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2009, 26(9): A29-A34.
- [71] Pein B C, Chang W D, Hwang H Y, et al. Terahertz-driven luminescence and colossal Stark effect in CdSe-CdS colloidal quantum dots [J]. *Nano Letters*, 2017, 17(9): 5375-5380.
- [72] Tareknege A T, Hirori H, Tanaka K, et al. Impact ionization dynamics in silicon by MV/cm THz fields [J]. *New Journal of Physics*, 2017, 19(12): 123018.
- [73] Raab J, Mezzapesa F P, Viti L, et al. Ultrafast terahertz saturable absorbers using tailored intersubband polaritons [J]. *Nature Communications*, 2020, 11: 4290.
- [74] Heindl M B, Kirkwood N, Lauster T, et al. Ultrafast imaging of terahertz electric waveforms using quantum dots [J]. *Light: Science & Applications*, 2022, 11: 5.
- [75] Liu M K, Hwang H Y, Tao H, et al. Terahertz-field-induced

- insulator-to-metal transition in vanadium dioxide metamaterial [J]. *Nature*, 2012, 487(7407): 345-348.
- [76] Matsunaga R, Tsuji N, Fujita H, et al. Light-induced collective pseudospin precession resonating with Higgs mode in a superconductor[J]. *Science*, 2014, 345(6201): 1145-1149.
- [77] Zhu Y, Chen F, Park J, et al. Structural imaging of nanoscale phonon transport in ferroelectrics excited by metamaterial-enhanced terahertz fields[J]. *Physical Review Materials*, 2017, 1(6): 060601.
- [78] Reimann J, Schlauderer S, Schmid C P, et al. Subcycle observation of lightwave-driven Dirac currents in a topological surface band[J]. *Nature*, 2018, 562(7727): 396-400.
- [79] Li X, Qiu T, Zhang J H, et al. Terahertz field-induced ferroelectricity in quantum paraelectric SrTiO₃ [J]. *Science*, 2019, 364(6445): 1079-1082.
- [80] Shi J J, Bie Y Q, Chen W, et al. Terahertz-driven irreversible topological phase transition in two-dimensional MoTe₂ [EB/OL]. (2019-10-30) [2021-06-04]. <https://arxiv.org/abs/1910.13609v1>.
- [81] Kovalev S, Dantas R M A, Germanskiy S, et al. Non-perturbative terahertz high-harmonic generation in the three-dimensional Dirac semimetal Cd₃As₂ [J]. *Nature Communications*, 2020, 11: 2451.
- [82] Shi J J, Baldini E, Latini S, et al. Room temperature terahertz electroabsorption modulation by excitons in monolayer transition metal dichalcogenides [J]. *Nano Letters*, 2020, 20(7): 5214-5220.
- [83] Schmid C P, Weigl L, Grössing P, et al. Tunable non-integer high-harmonic generation in a topological insulator[J]. *Nature*, 2021, 593(7859): 385-390.
- [84] Bonetti S, Hoffmann M C, Sher M J, et al. THz-driven ultrafast spin-lattice scattering in amorphous metallic ferromagnets [J]. *Physical Review Letters*, 2016, 117(8): 087205.
- [85] Schlauderer S, Lange C, Baierl S, et al. Temporal and spectral fingerprints of ultrafast all-coherent spin switching[J]. *Nature*, 2019, 569(7756): 383-387.
- [86] Mashkovich E A, Grishunin K A, Mikhaylovskiy R V, et al. Terahertz optomagnetism: nonlinear THz excitation of GHz spin waves in antiferromagnetic FeBO₃ [J]. *Physical Review Letters*, 2019, 123(15): 157202.
- [87] Chekhov A L, Behovits Y, Heitz J J F, et al. Ultrafast demagnetization of iron induced by optical versus terahertz pulses[J]. *Physical Review X*, 2021, 11(4): 041055.
- [88] Mashkovich E A, Grishunin K A, Dubrovin R M, et al. Terahertz light-driven coupling of antiferromagnetic spins to lattice[J]. *Science*, 2021, 374(6575): 1608-1611.
- [89] Damari R, Weinberg O, Krotkov D, et al. Strong coupling of collective intermolecular vibrations in organic materials at terahertz frequencies [J]. *Nature Communications*, 2019, 10: 3248.
- [90] Peller D, Kastner L Z, Buchner T, et al. Sub-cycle atomic-scale forces coherently control a single-molecule switch[J]. *Nature*, 2020, 585(7823): 58-62.
- [91] Wimmer L, Herink G, Solli D R, et al. Terahertz control of nanotip photoemission[J]. *Nature Physics*, 2014, 10(6): 432-436.
- [92] Nanni E A, Huang W R, Hong K H, et al. Terahertz-driven linear electron acceleration[J]. *Nature Communications*, 2015, 6: 8486.
- [93] Huang W R, Nanni E A, Ravi K, et al. Toward a terahertz-driven electron gun[J]. *Scientific Reports*, 2015, 5: 14899.
- [94] Huang W R, Fallahi A, Wu X J, et al. Terahertz-driven, all-optical electron gun[J]. *Optica*, 2016, 3(11): 1209-1212.
- [95] Hibberd M T, Healy A L, Lake D S, et al. Acceleration of relativistic beams using laser-generated terahertz pulses [J]. *Nature Photonics*, 2020, 14(12): 755-759.
- [96] Kealhofer C, Schneider W, Ehberger D, et al. All-optical control and metrology of electron pulses [J]. *Science*, 2016, 352(6284): 429-433.
- [97] Curry E, Fabbri S, Maxson J, et al. Meter-scale terahertz-driven acceleration of a relativistic beam [J]. *Physical Review Letters*, 2018, 120(9): 094801.
- [98] Snively E C, Othman M A K, Kozina M, et al. Femtosecond compression dynamics and timing jitter suppression in a THz-driven electron bunch compressor[J]. *Physical Review Letters*, 2020, 124(5): 054801.
- [99] Zhao L R, Wang Z, Lu C, et al. Terahertz streaking of few-femtosecond relativistic electron beams[J]. *Physical Review X*, 2018, 8(2): 021061.
- [100] Zhao L R, Wang Z, Tang H, et al. Terahertz oscilloscope for recording time information of ultrashort electron beams [J]. *Physical Review Letters*, 2019, 122(14): 144801.
- [101] Zhou C L, Bai Y F, Song L W, et al. Direct mapping of attosecond electron dynamics [J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(3): 216-221.
- [102] Zhang D F, Fallahi A, Hemmer M, et al. Segmented terahertz electron accelerator and manipulator (STEAM) [J]. *Nature Photonics*, 2018, 12(6): 336-342.
- [103] Zhang D F, Fallahi A, Hemmer M, et al. Femtosecond phase control in high-field terahertz-driven ultrafast electron sources [J]. *Optica*, 2019, 6(7): 872-877.
- [104] Zhang D F, Fakhari M, Cankaya H, et al. Cascaded multi-cycle terahertz driven ultrafast electron acceleration and manipulation [J]. *Physical Review X*, 2020, 10(1): 011067.
- [105] Xu H X, Yan L X, Du Y C, et al. Cascaded high-gradient terahertz-driven acceleration of relativistic electron beams [J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(6): 426-430.
- [106] Amini T, Jahangiri F, Ameri Z, et al. A review of feasible applications of THz waves in medical diagnostics and treatments [J]. *Journal of Lasers in Medical Sciences*, 2021, 12: e92.
- [107] Peralta X G, Lipscomb D, Wilms G J, et al. Terahertz spectroscopy of human skin tissue models with different melanin content [J]. *Biomedical Optics Express*, 2019, 10(6): 2942-2955.
- [108] 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.
- [109] Greschner A A, Ropagnol X, Kort M, et al. Room-temperature and selective triggering of supramolecular DNA assembly/disassembly by nonionizing radiation [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2019, 141(8): 3456-3469.
- [110] Zhang C, Yuan Y F, Wu K J, et al. Driving DNA origami assembly with a terahertz wave [J]. *Nano Letters*, 2022, 22(1): 468-475.
- [111] Nemova E F, Cherkasova O P, Nikolaev N A, et al. A study on molecular mechanisms of terahertz radiation interaction with biopolymers based on the example of bovine serum albumin [J]. *Biophysics*, 2020, 65(3): 410-415.
- [112] Yamazaki S, Harata M, Ueno Y, et al. Propagation of THz irradiation energy through aqueous layers: demolition of actin filaments in living cells [J]. *Scientific Reports*, 2020, 10: 9008.
- [113] Hough C M, Purschke D N, Bell C, et al. Disassembly of microtubules by intense terahertz pulses [J]. *Biomedical Optics Express*, 2021, 12(9): 5812-5828.
- [114] Bogomazova A N, Vassina E M, Goryachkovskaya T N, et al. No DNA damage response and negligible genome-wide transcriptional changes in human embryonic stem cells exposed to terahertz radiation [J]. *Scientific Reports*, 2015, 5: 7749.
- [115] Tachizaki T, Sakaguchi R, Terada S, et al. Terahertz pulse-altered gene networks in human induced pluripotent stem cells [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(21): 6078-6081.

- [116] Hwang Y, Ahn J, Mun J, et al. *In vivo* analysis of THz wave irradiation induced acute inflammatory response in skin by laser-scanning confocal microscopy[J]. *Optics Express*, 2014, 22(10): 11465-11475.
- [117] Kim K T, Park J, Jo S J, et al. High-power femtosecond-terahertz pulse induces a wound response in mouse skin[J]. *Scientific Reports*, 2013, 3: 2296.
- [118] Zhang B, Li S, Chai S, et al. Nonlinear distortion and spatial dispersion of intense terahertz generation in lithium niobate via the tilted pulse front technique[J]. *Photonics Research*, 2018, 6(10): 959.
- [119] Dong T, Li S, Manjappa M, et al. Nonlinear THz-nano metasurfaces[J]. *Advanced Functional Materials*, 2021, 31(24): 2100463.

Lithium Niobate Strong-Field Terahertz Source and Its Applications

Wu Xiaojun^{1,2*}, Ren Zejun¹, Kong Deyin¹, Hao Sibao³, Dai Mingcong¹,
Xiong Hongting¹, Li Peiyan¹

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;*

³ *School of Cyber Science and Technology, Beihang University, Beijing 100191, China*

Abstract

Significance Terahertz (THz) science is one of the technological frontier fields of significant research in the world, and THz technology has crucial applications in aerospace, national security, communication radar, quantum information, material science, biomedicine and other fields. The THz electromagnetic wave is located between microwave and infrared, and its spectrum width is about thirty times greater than that of microwave and millimeter waves. It is a strategic frequency resource that various countries are scrambling for, and enormous demands occur in both military and civil applications. However, this frequency band, which connects electronics and photonics, has not been fully exploited and utilized. The THz frequency band has many unique characteristics, such as the time-resolving ability with narrow pulse widths at the picosecond level, the ability to penetrate paper and clothing, the spectral properties of many matters, and the low photon energy. These unique properties give THz waves many important applications, such as nondestructive testing, communication radar, security checks and anti-terrorist, and biomedicine. However, the key factor which hinders the development of THz science and applications is the lack of high-performance THz sources, core devices, and system integration. Among them, the lack of high-efficiency, high-beam quality, and high-stability strong-field THz radiation sources is the focus and difficulty of the current solution.

The methods of generating THz radiation include mainly the electrical and optical methods. This paper mainly discusses the optical methods to generate THz radiation. Optical methods for generating THz radiation include femtosecond laser excitation of nonlinear crystals, photoconductive antennas, plasmas, and so on, which are widely used in sensing imaging and communication. However, the low efficiency and low energy of the current THz radiation source directly limit the nonlinear effects of THz-matter interaction, novel quantum matter state regulation, electron acceleration, biomedicine and other multifaceted frontier scientific and applied research. Therefore, researchers in related fields are working to improve the performance of THz sources and to further promote the development of THz technology.

After the presentation of the tilted pulse front technique, lithium niobate crystals with large nonlinear coefficients, mature manufacturing processes, and high destruction thresholds are expected to realize the generation of high-energy strong-field THz radiation through femtosecond laser action. Currently, pumping lithium niobate crystals by femtosecond laser based on the tilted pulse front technique is still one of the effective ways to generate high-energy strong-field THz radiation. Therefore, it is crucial and necessary to summarize the relevant research on lithium niobate strong-field THz sources to promote the development of this field.

Progress In this paper, the study on lithium niobate strong-field THz sources is summarized as follows. Firstly, the development of strong-field THz generation based on femtosecond-laser-pumped lithium niobate crystals is reviewed in five stages (Fig. 1). Shen's research group at the University of California generated the world's first THz pulsed radiation from lithium niobate crystals by laser pulses. Hebling's group at the University of Pécs, Hungary, proposed the tilted pulse front technique to solve the phase mismatch between near-infrared (NIR) light and THz in lithium niobate crystals. Then, the development of strong-field THz generation via tilted pulse front technique based on femtosecond-laser-pumped lithium niobate crystals has been initiated.

Secondly, the principle of lithium niobate tilted pulse front is described in four aspects: the history of the tilted pulse front theory of lithium niobate (Fig. 2), the key factors to be considered in the theoretical model (Fig. 3), the phase

matching and pulse front tilt angle (Fig. 4), and the main methods of model calculation, respectively. Guidance is provided for generating high-energy strong-field THz sources in the future by summarizing the historical evolution of the theoretical model for generating strong-field THz based on the tilted pulse front technique and the mechanism of radiation efficiency saturation of lithium niobate THz strong sources.

Thirdly, the generation of lithium niobate single-period strong-field THz is described. A typical optical path diagram (Fig. 5) based on lithium niobate to generate a single-period strong-field THz and the composition of the tilted pulse front device are introduced.

Fourthly, the lithium niobate multi-period strong-field THz generation is described. Two methods to generate multi-period strong-field THz are introduced: the one based on the tilted pulse front technology of lithium niobate (Fig. 6) and the one based on the quasi-phase matching of periodically polarized lithium niobate (Fig. 7). Lithium niobate crystals are one of the most popular materials for generating strong-field THz, both for single-period and multi-period.

Fifthly, the applications of lithium niobate strong-field THz are discussed, which are presented in three aspects: strong-field THz-matter interactions (Fig. 9), strong-field THz electron acceleration and manipulation (Fig. 10), and strong-field THz biological effects (Fig. 11). These applications demonstrate the advantages of this type of strong-field THz sources and raise the need for higher strong-field THz sources.

Finally, the strong-field THz sources and applications at Beihang University are summarized and the results of Beihang University and its collaborative team in this field are introduced (Fig. 12). We are looking forward to the unprecedented new challenges and opportunities that extreme THz science and applications and their multidisciplinary intersection will bring in the future.

Conclusions and Prospects Pumping lithium niobate crystals by femtosecond laser via tilted pulse front technique is one of the effective ways to generate strong-field THz. In summary, lithium niobate crystals are one of the popular materials for generating strong-field THz sources, and lithium niobate strong-field THz sources have played an important role in the applications and studies such as the strong-field THz interactions with matter, electron acceleration and manipulation, and biomedicine. In order to promote better development in strong-field THz sources, the study of lithium niobate strong-field THz source still needs to be deeply explored from the aspects of theoretical basis, structure, and application scenarios.

Key words ultrafast optics; strong-field terahertz radiation; lithium niobate; tilted pulse front; femtosecond laser