

中国激光

基于受激声子极化激元的太赫兹波传输调控与非线性效应研究

徐西坦^{1,2}, 黄意博^{1,2}, 卢瑶^{1,2}, 马若斌^{1,2}, 吴强^{1,2*}, 许京军^{1,2}¹南开大学物理科学学院&泰达应用物理研究院弱光非线性光子学教育部重点实验室, 天津 300457;²南开大学深圳研究院, 广东 深圳 518083

摘要 太赫兹波与离子晶体中光学声子耦合形成的受激声子极化激元,为太赫兹波在晶体材料中的传输调控和非线性增强提供了有效途径,进而为强场太赫兹科学技术的发展开辟了新的可能性。从物理概念、实验方案、调控手段等方面简要回顾了受激声子极化激元相关的研究进展,分析了受激声子极化激元作用下太赫兹波对光与物质相互作用机制的影响,展望了受激声子极化激元在未来强场太赫兹科学技术中的发展潜力与应用前景。

关键词 太赫兹; 受激声子极化激元; 传输调控; 非线性效应

中图分类号 O436 文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL230973

1 引言

太赫兹 (THz) 波是指频率范围为 0.1~10 THz 的电磁波,对应波长范围为 0.03~3 mm,在材料科学^[1-2]、无损检测^[3-4]、生物医疗^[5-6]、安检成像^[7-8]、下一代通信^[9-10]等领域得到广泛应用,推动了太赫兹光学的迅速发展。然而无论是基础研究还是应用推广,都需要对太赫兹波进行有效调控,才能实现频率调节^[11-12]、定向传输^[13-14]、模式转换^[15-16]、相位控制^[17-18]等功能。此外,传统太赫兹波的非线性效应受限于电场强度和作用距离^[19-20]。对于许多离子晶体而言,外界入射的太赫兹波都会与材料中光学声子耦合形成受激声子极化激元,这使得太赫兹波与晶体材料的相互作用有了全新的机制^[21],有望对太赫兹波与晶体相互作用的强度与距离实现有效控制,从而为太赫兹波非线性效应的研究提供理论基础和技术手段。

本文对基于受激声子极化激元的太赫兹物理与技术的研究进展进行了归纳总结,介绍了受激声子极化激元的物理概念及其在实验中的激发与探测手段,回顾了三种不同的传输调控方法,分析了受激声子极化激元对太赫兹波非线性的影响,并对受激声子极化激元未来在强场太赫兹技术中的发展潜力与应用前景进行了展望。

2 受激声子极化激元的物理概念

在自然条件下,晶体中原子在平衡位置附近的热振动称为晶格振动。由于晶体中原子排布的长程有序性,不同原子之间互相牵制形成集体振荡,并以晶格格波的形式存在,在凝聚态物理中被称为声子^[22]。对于离子晶体,格波有声学波和光学波之分。离子晶体的强极性使得晶格中正负离子的振动过程伴随着交变电场,这种交变电场又会反过来影响正负离子的振动,即格波不会单独存在,而是与辐射电磁波耦合,形成一种耦合波,也就是声子极化激元^[23]。在非绝对零度下,离子晶体中的正负离子就会由于热振动形成声子极化激元,这里称为自发声子极化激元(历史上称为声子极化激元或电磁耦子,这里明确指出为自发声子极化激元,以利于后文受激声子极化激元的提出与讨论)。1951年,黄昆先生(Huang)^[24-25]首次预言了声子极化激元的存在,并提出了著名的黄昆方程:

$$\ddot{Q} = b_{11}Q + b_{12}E, \quad (1)$$

$$P = b_{21}Q + b_{22}E, \quad (2)$$

式中: Q 代表离子简正模位移; E 代表离子位移产生的宏观电场; P 为极化场;系数 $b_j (i, j=1, 2)$ 是依赖于材料自身并与材料光轴方向相关的常数, $b_{11} = -\omega_0^2$, $b_{12} = b_{21} = \omega_0 \sqrt{\epsilon_0 (\epsilon_{(\infty)} - \epsilon_{(0)})}$, $b_{22} = \epsilon_0 (\epsilon_{(\infty)} - 1)$, ω_0 表示离子振动的本征角频率, ϵ_0 表示真空的介电常数, $\epsilon_{(0)}$ 和 $\epsilon_{(\infty)}$ 分别表示离子晶体材料的低频和高频相对介电

收稿日期: 2023-06-29; 修回日期: 2023-08-17; 录用日期: 2023-08-18; 网络首发日期: 2023-08-25

基金项目: 国家自然科学基金(62205158)、中国博士后科学基金(2022M711709)、国际科技合作基地及111引智基地项目(B23045)、长江学者和创新团队发展计划(IRT_13R29)

通信作者: *wuqiang@nankai.edu.cn

常数。

式(1)为源振动方程,描述离子振动, $b_{11}Q$ 为弹性恢复力, $b_{12}E$ 为宏观电场施加在正负离子上的场力。式(2)为场极化方程,总的宏观极化既包括离子位移引起的极化,也包括宏观电场的贡献。将黄昆方程与麦克斯韦方程组相结合,可以解出声子极化激元的色散曲线,如图1(a)所示为双原子晶体中的声子极化激元的色散曲线。从色散曲线可以看出:对于下支而言,当

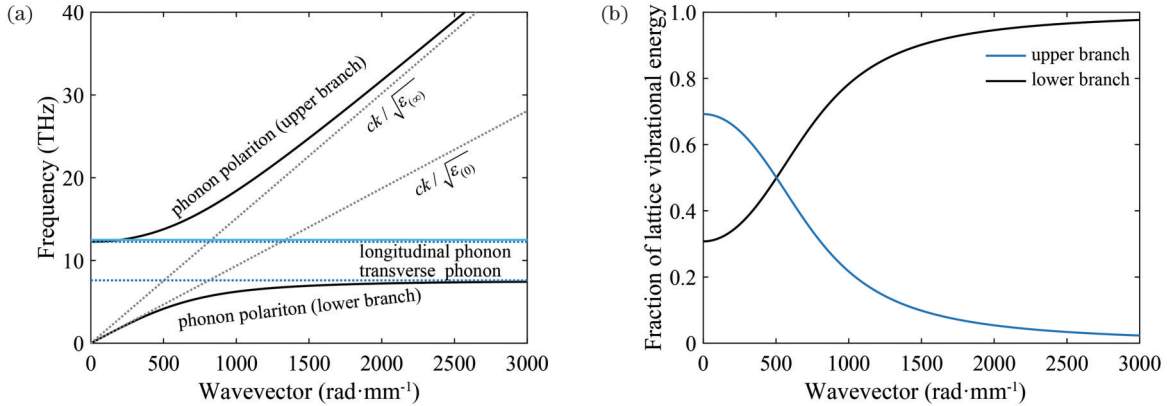


图1 声子极化激元的色散曲线。(a) 铌酸锂晶体中声子极化激元的色散曲线;(b) 经典模型下声子极化激元中晶格振动的能量占比
Fig. 1 Dispersion curves of phonon polariton. (a) Dispersion curves of phonon polariton in LiNbO₃ crystal; (b) classically derived fraction of lattice vibrational energy in phonon polariton

此外,当相干太赫兹波在离子晶体中产生并传输时,也会参与到格波与辐射场的耦合之中,并驱动整个体系产生强度更强、相干度更高的声子极化激元,称为受激声子极化激元。做一个不甚严谨的类比,这里的自发和受激的关系与自然光和激光的关系类似,不同之处在于这里所涉及的是广义的散射,而不是光的发射。受激声子极化激元需要用非线性黄昆方程来描述^[21,26]:

$$\ddot{x} + \gamma\dot{x} + \omega_0^2 x = (Nm)^{-1/2} b_{12} E - ax^2 + (q/m) E_T, \quad (3)$$

$$P = \epsilon_0 (\epsilon_{\infty} - 1) E + (Nm)^{1/2} b_{21} x, \quad (4)$$

式中: q 和 m 分别为离子的有效电荷和有效质量; N 为单位体积内振子的数量; x 为离子的振动幅度; $\gamma\dot{x}$ 为振动时的损耗。

非线性黄昆方程式(3)在黄昆方程式(1)的基础上加入了离子振动的非线性恢复力项 ax^2 、损耗项 $\gamma\dot{x}$ 和外场驱动项 $(q/m)E_T$ 。非线性黄昆方程通过引入外场驱动力,从数学上将声子极化激元纳入到了光与物质相互作用的体系中。这种通过受激声子极化激元的光与物质相互作用机制,从物理上打破了传统的“光-材料电子态”的相互作用范式,揭示了低频的太赫兹波可以通过受激声子极化激元,与晶体材料直接发生相互作用。

需要说明的是,热激发的声子极化激元在极性晶体中呈现一种相对稳定的存在与分布,其强度与晶体的极性和温度有关,具有全局性和自发性的特点。一旦晶体中的某个或某些离子被强外场激发,这种激发

波矢较小时,声子极化激元行为类似于光子;而当波矢较大时,行为类似于声子。上支特性则与下支刚好相反。声子极化激元作为电磁波与格波的耦合波,其能量一部分为机械能存储于晶格中,一部分为电磁振荡的电磁能^[25]。图1(b)展示了声子极化激元上下支的机械能占据总能量的比例,对于下支机械能占比随频率增大而增大,对于上支机械能占比随频率增大而降低,与色散曲线特性相对应。

态就会迅速以耦合波的形式向周围扩散,在光与晶体材料的相互作用中扮演重要的角色。

3 受激声子极化激元的产生

飞秒激光脉冲泵浦铁电晶体,是激发受激声子极化激元的常用手段之一^[27-28]。其物理过程目前存在两种主流的解释:冲击受激拉曼散射^[29-30]和光整流效应^[31-32]。本文主要采用第一种解释:飞秒激光脉冲泵浦铁电晶体引起晶体中离子的振荡,离子振荡辐射的电磁波继而引起其他离子的振荡,即飞秒激光脉冲驱动铁电晶体中的离子振荡,进而产生太赫兹波段的受激声子极化激元。因此可以通过改变泵浦飞秒激光的实验配置来调控受激声子极化激元的中心频率、带宽等参数。

3.1 宽带激发

宽带激发的实验配置如图2(a)所示,飞秒激光经透镜聚焦后泵浦铌酸锂晶体,当其偏振方向与铌酸锂晶体的光轴方向平行时,能够使太赫兹声子极化激元的激发效率达到最高。由于飞秒激光与受激声子极化激元在铌酸锂晶体中折射率不同,传播速度的失配将引起切伦科夫辐射^[27],导致受激声子极化激元的波前倾斜,不便于开展后续研究。当铌酸锂晶体的厚度减小至几十微米厚的亚波长量级时,在太赫兹波段可以充当亚波长平板波导(LNSW)^[33],对切伦科夫辐射起到抑制作用,使受激声子极化激元的波前与波导边界垂直,形成较为稳定的传输模式^[34]。在这种配置

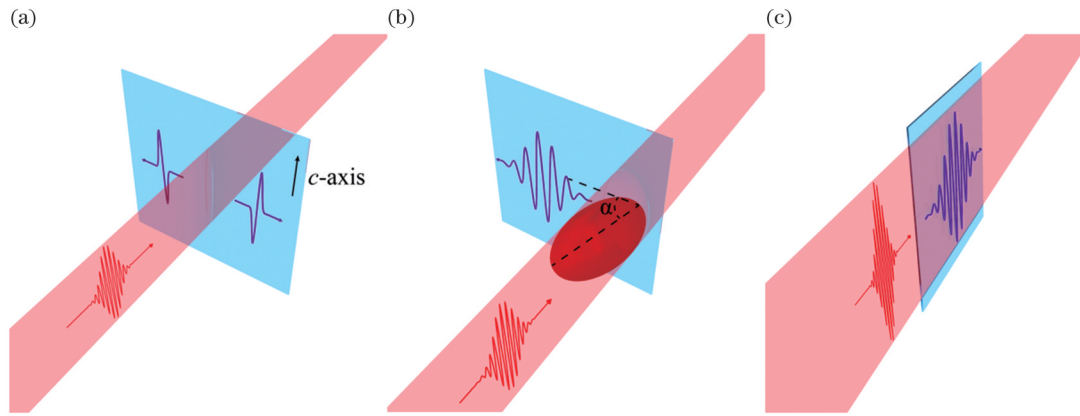


图2 三种受激声子极化激元的激发方式。(a)宽带激发;(b)光栅倾斜波前;(c)侧向激发

Fig. 2 Three excitation methods of stimulated phonon polariton. (a) Broadband excitation; (b) tilted wavefront by gratings; (c) lateral excitation

下,飞秒激光沿厚度方向穿过钽酸锂晶片,二者相互作用时间在亚皮秒量级,激发出单周期的宽带受激声子极化激元。

3.2 强场窄带激发

钽酸锂中飞秒激光和受激声子极化激元的速度失配极大地制约了后者的激发效率^[35]。为了实现强场窄带多周期的太赫兹源,可以通过在钽酸锂晶片降低飞秒激光的传输速度和提高受激声子极化激元的传输速度实现二者的速度匹配,从而提高受激声子极化激元的激发效率,对应的实验方案分别为光栅倾斜波前和侧向激发。

倾斜泵浦光波前技术最早在2002年由Hebling等^[36]提出,并在钽酸锂晶体中提高了飞秒激光激发太赫兹波的能量转化效率^[37-38]。2009年Lin等^[39]通过光栅衍射在钽酸锂亚波长波导上实现了多周期太赫兹受激声子极化激元的激发。其物理原理是将飞秒激光的传播速度进行分解,使其在钽酸锂中沿受激声子极化激元传播方向的投影分量与受激声子极化激元的传播速度相匹配,从而实现受激声子极化激元的高效激发。实验配置如图2(b)所示,泵浦飞秒激光经闪耀光栅衍射后,其-1级衍射光通过柱透镜将闪耀光栅的像成在钽酸锂晶片表面,此时衍射光的波前不再与传播方向垂直,而是发生一定角度的倾斜,与晶片呈现出夹角 α 。当衍射光垂直照射钽酸锂晶片时,其波前与晶片的交点不再是固定的,而是随着衍射光的向前传输而发生移动,移动速度 $v_{\text{pump}} = c \cot \alpha$ 。其中相速度与 v_{pump} 匹配的频率为 f 的受激声子极化激元将被不断增强,不满足速度匹配条件的其他频率成分则经历较大耗散,最终形成中心频率为 f 的强场窄带的受激声子极化激元。在实验过程中可以通过改变夹角 α ,对中心频率 f 进行调控。

除了降低飞秒激光在钽酸锂中的有效传输速度外,还可以提高受激声子极化激元的传输速度来实现速度匹配,激发强场窄带受激声子极化激元。2017

年,本团队提出飞秒激光侧向泵浦钽酸锂亚波长波导激发窄带受激声子极化激元的方案^[40]。其物理原理是利用钽酸锂亚波长平板波导降低受激声子极化激元的有效相折射率,使其在特定频率下的相速度与飞秒激光的群速度相匹配,从而激发出窄带受激声子极化激元。实验配置如图2(c)所示,飞秒激光经过聚焦后从侧边泵浦钽酸锂亚波长平板波导,激发的受激声子极化激元与飞秒激光在波导内同向传输。在飞秒激光的传输过程中,受激声子极化激元不断产生,其有效相折射率由于受到亚波长平板波导的调制而表现出与频率的强烈依赖关系,随着频率的降低有效相折射率从5.11连续下降并趋向于1。因此,相速度与飞秒激光群速度相匹配的特定频率的受激声子极化激元将被不断增强,其他频率成分由于速度失配而经历较大耗散。该配置增加了飞秒激光与受激声子极化激元的相干长度,提高了泵浦光的利用率,大幅度降低了频率展宽,为强场多周期窄带太赫兹源的产生提供了新思路。在后续研究中,可以通过调节钽酸锂亚波长平板波导的厚度,改变受激声子极化激元有效相折射率与频率的依赖关系,实现强场受激声子极化激元的高效窄带选频激发。

4 受激声子极化激元的探测

基于泵浦探测和相衬成像原理,南开大学吴强(Wu)课题组和麻省理工学院Nelson课题组合作搭建了时空超分辨定量成像系统,能够对受激声子极化激元在钽酸锂晶体中的传输过程进行定量化、动态化、可视化探测^[41]。实验光路如图3所示,飞秒激光的中心波长为800 nm,脉冲宽度为120 fs,重复频率为1 kHz,经过分束镜按能量比9:1分成两束。能量较高的一束用作泵浦光,通过机械延迟线后,经透镜聚焦在钽酸锂晶片上,产生受激声子极化激元。能量较低的一束用作探测光,经过倍频、空间滤波、扩束后,辐照钽酸锂晶体。由于电光效应,受激声子极化激元在传输过程中

会引起铌酸锂晶体折射率的变化 $\Delta n(x, z, t)$, 当探测光经过铌酸锂时就会感受到折射率的变化并将其转化为探测光的相位改变 $\Delta\varphi(x, z, t)$, 这样就把受激声子极化激元的电场信息 $E_{\text{THz}}(x, z, t)$ 转换成了探测光的相位信息 $\Delta\varphi(x, z, t)$:

$$\Delta\varphi(x, z, t) = 2\pi \frac{h}{\lambda} \Delta n(x, z, t) = 2\pi \frac{h}{\lambda} \frac{n_c^3 r_{33}}{2} E_{\text{THz}}(x, z, t), \quad (5)$$

式中: h 为铌酸锂晶体的厚度; λ 为探测光的波长; n_c 为探测光的非寻常折射率; r_{33} 为铌酸锂晶体的电光系数。

为了方便被电荷耦合元件等成像器件采集, 还需

要把探测光的相位信息转化为强度信息。图 3 中所使用的是基于相衬成像技术的 $4f$ 系统^[42]。探测光在经过第一个透镜后, 零级衍射光和高级衍射光在傅里叶面上分离, 相位板为二者之间引入 $\pi/2$ 的相位差, 经过第二个透镜后, 探测光的相位信息在傅里叶面上转化为强度信息:

$$I(x, z, t) \approx I_0(x, z, 0) [1 - 2\Delta\varphi(x, z, t)], \quad (6)$$

式中: $I_0(x, z, 0)$ 表示没有受激声子极化激元信号时探测光的光强, 通过机械延迟线可以改变泵浦光和探测光到达铌酸锂晶体的时间差, 实现对受激声子极化激元电场信息的时间扫描, 经过数据处理系统, 能够获得受激声子极化激元的完整时空演化过程。

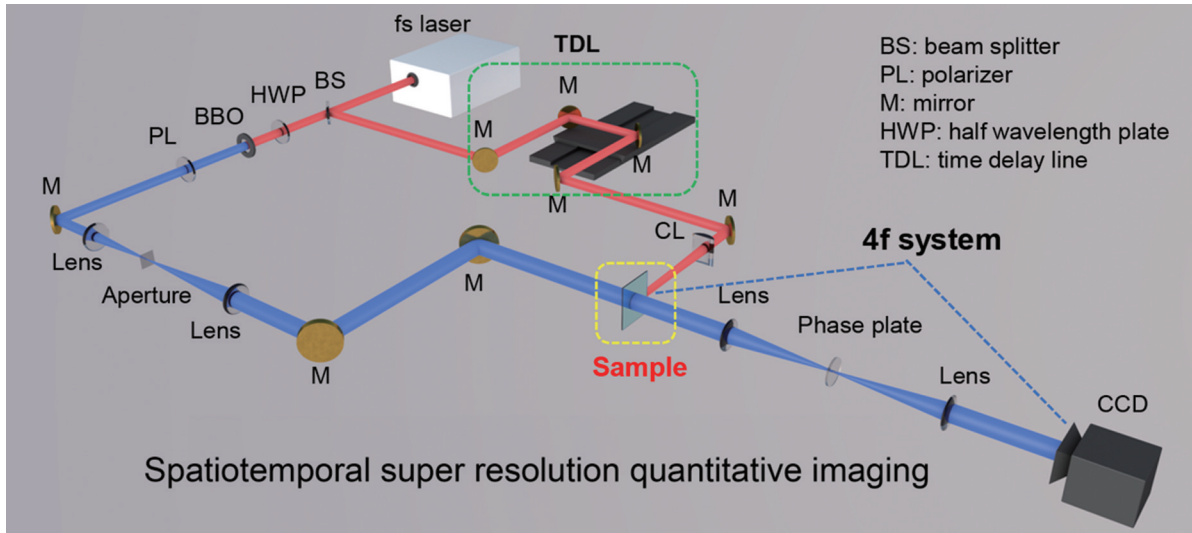


图 3 时空超分辨定量成像系统示意图(侧向激发)^[43]

Fig. 3 Schematic of spatiotemporal super resolution quantitative imaging system (lateral excitation)^[43]

5 受激声子极化激元的传输调控

5.1 拓扑谷传输

拓扑谷光子晶体(VPC)凭借其拓扑保护性、高度可调性、单向传输性、可集成性及低损耗传输等优势^[44-45], 在太赫兹波传输调控中具有较大的应用潜力^[13, 46]。谷依赖的边缘态通常在具有逆原胞的两种谷光子晶体的交界面上形成, 相反的陈数为拓扑相变提供了保证。本团队在 $50 \mu\text{m}$ 厚的铌酸锂亚波长平板波导上设计了两种具有相同晶格常数 $519.6 \mu\text{m}$ 的谷光子晶体 VPC 1 和 VPC 2^[43]。如图 4(a) 所示, VPC1 的原胞(上菱形虚线框)由两个直径不同的圆形空气孔组成, 较小的空气孔直径为 $129.6 \mu\text{m}$, 较大的空气孔直径为 $302.4 \mu\text{m}$ 。VPC 2 是 VPC 1 的反演对称, 通过交换空气孔直径构建出另一种原胞结构(下菱形虚线框), 与 VPC 1 的原胞具有相同的能带结构。通过在 VPC 1 和 VPC 2 之间构建交界面, 就能实现拓扑谷传输。图 4(b) 给出了沿界面的色散曲线, 其中谷依赖的边缘态在 K 谷呈现负的群速度, 但在 K' 谷呈现正的群速度。在此基础上, 本团队分别构造了

拥有一个弯折的 V 型和两个弯折的 Z 型拓扑界面, 以检验具有鲁棒性的拓扑谷传输。飞秒激光在铌酸锂谷光子晶体的输入端进行侧向激发产生受激声子极化激元, 而后进入谷光子晶体并沿 VPC 1 和 VPC 2 的交界面传输。

图 4(c) 和图 4(d) 分别为 V 型和 Z 型结构中频率为 0.190 THz (拓扑带隙内) 的受激声子极化激元模式的电场强度分布。在拓扑带隙内, 受激声子极化激元进入谷光子晶体后, 大部分能量沿着不同拓性质区域之间的交界面进行传输。当遇到第一个 120° 的大角度弯折时, 具有拓扑保护性的受激声子极化激元在两种结构中都成功偏转, 并沿交界面平滑绕行。Z 型结构中的受激声子极化激元甚至成功绕过了第二个 120° 的大角度弯折。然而, 当把研究频率改变为拓扑带隙外的 0.210 THz 时, 图 4(e) 和图 4(f) 展示了不同的电场强度分布结果。不具备拓扑保护性的受激声子极化激元沿交界面传输至第一个弯折后, 大部分能量向四周散射损耗, 剩余部分继续传输, 表现出平凡模式的传输行为。此外, 具有拓扑保护性的受激声子极化激元在经过第一个大角度

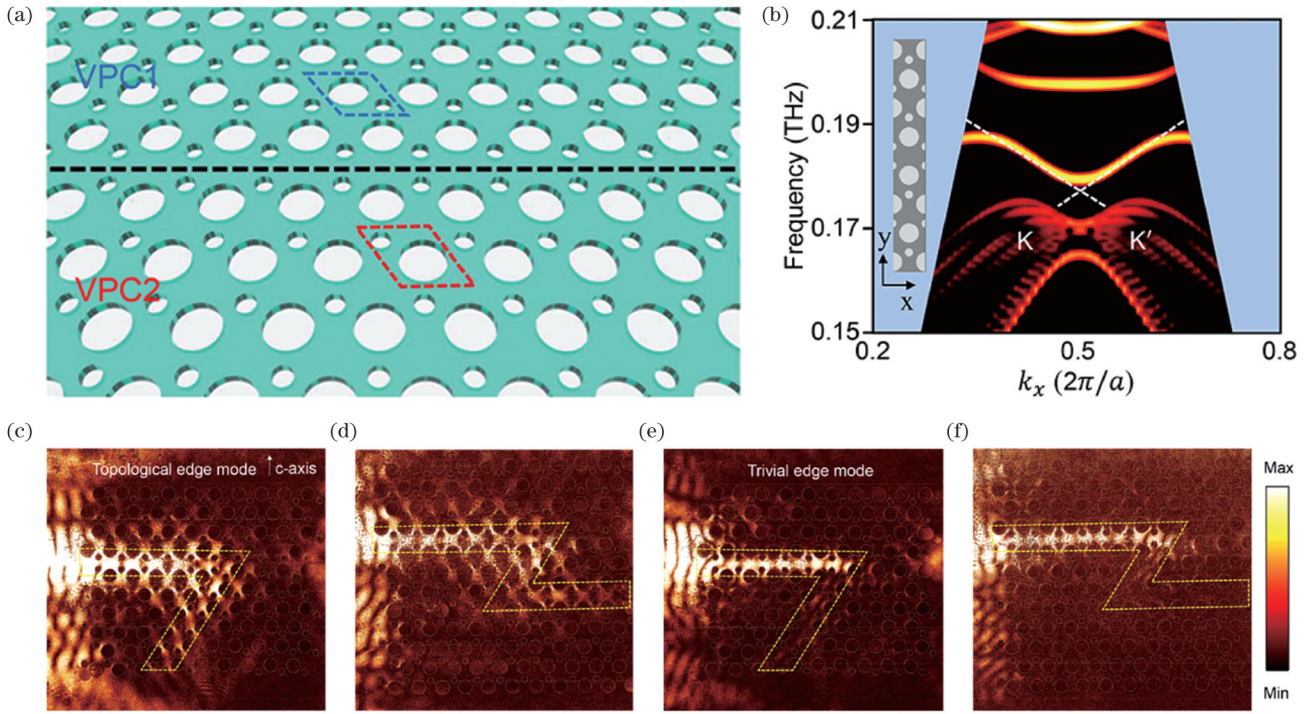


图 4 受激声子极化激元的拓扑谷传输^[43]。(a) 铌酸锂谷光子晶体示意图；(b) 插图中超原胞的色散曲线；(c), (d) V 型和 Z 型谷光子晶体中, 受激声子极化激元在拓扑带隙内的电场强度分布, 黄色虚线围成的区域表示界面；(e), (f) V 型和 Z 型谷光子晶体中, 受激声子极化激元在拓扑带隙外的电场强度分布

Fig. 4 Topological valley transport for stimulated phonon polaritons^[43]. (a) Schematic diagram of LiNbO₃ VPC; (b) dispersion curves of supercell shown in inset; (c), (d) electric intensity distribution of stimulated phonon polaritons inside topological bandgap in V- and Z-type VPCs, with yellow dashed sections indicating interface; (e), (f) electric intensity distribution of stimulated phonon polaritons outside topological bandgap in V- and Z-type VPCs

弯折前的能量分布较宽, 如图 4(c) 的虚线框所示, 几乎覆盖了整个交界面区域, 在经历一个弯折后, 演化为沿着交界面边缘的传输。而平凡模式的能量在遇到弯折前主要分布在交界面的中心, 经历弯折后能量大部分被耗散。

图 5(a) 和图 5(b) 展示了 V 型结构弯折前后交界面中心和边缘的频谱信息, 分析发现交界面中心的拓扑声子极化激元强度在转弯后急剧下降, 在 0.190 THz 处比转弯前减小了 5 个数量级, 而交界面边缘处的拓扑声子极化激元强度在转弯前后保持了相同的数量级。图 5(c)~图 5(f) 分别绘制了 Z 型结构交界面不同区域处的色散曲线。在交界面上沿中心, 受激声子极化激元具有较宽的频谱范围, 且部分能量分布在拓扑带隙之外。其中 0.205~0.235 THz 之间的受激声子极化激元沿交界面具有很强的方向性, 而不是被散射到体区。在交界面下沿中心, 经过两个大角度弯折后, 受激声子极化激元的能量主要集中在拓扑带隙内 0.190 THz 附近。而在交界面上沿边缘, 受激声子极化激元被限制在 0.190 THz 附近的拓扑带隙中, 拓扑带隙外的平凡模式在一开始就被过滤掉了。同时交界面下沿边缘的频率分布与上沿边缘具有较好的一致性, 受激声子极化激元集中分布在 0.190 THz 附近。通过分析谷边缘模式在铌酸锂亚波长波导中的传输特性, 可以发现

拓扑受激声子极化激元在面对大角度弯折时具有鲁棒性, 在太赫兹波传输调控领域具有广阔的应用前景。

5.2 模式转换与单向传输

电磁波与局域表面等离激元之间的强相互作用, 可以在自由空间波长尺度上引入突变相移, 灵活调节等离子体的结构参数就能实现相位变化^[47-48]。本团队通过在铌酸锂亚波长矩形波导表面设计渐变超表面, 引入单向相位梯度, 打破空间动量对称性, 实现了太赫兹波在波导内的模式转换和单向传输^[49]。

实验设计如图 6(a) 所示, 矩形波导的高度为 50 μm, 宽度为 200 μm, 渐变超表面由 52 个长度渐变金属天线阵列组成, 单个天线的宽度为 $w=10 \mu\text{m}$, 相邻天线间距为 $\Delta_x=30 \mu\text{m}$, 同时引入两个自由度: 渐变超表面中轴与波导中轴的偏移量 $g=20 \mu\text{m}$, 天线长轴方向与铌酸锂光轴方向的夹角 $\theta=40^\circ$ 。图 6(b) 和图 6(c) 显示了频率为 0.38 THz 的受激声子极化激元分别从波导两端口入射 TE₀₀ 模式时的电场模式分布。正向入射的 TE₀₀ 模式可以转换为 TE₁₀ 模式, 转化效率为 73.2%。而在反向入射时, 大部分能量由于反射和散射被阻挡, 只有少量能量通过, 表现出矩形波导中受激声子极化激元的传输具有明显的不对称性。图 6(d) 为不同入射方向下的宽带透射谱, 实线和虚线分别表示全场和波导模式的透射曲线, 黑色曲线和红色曲线

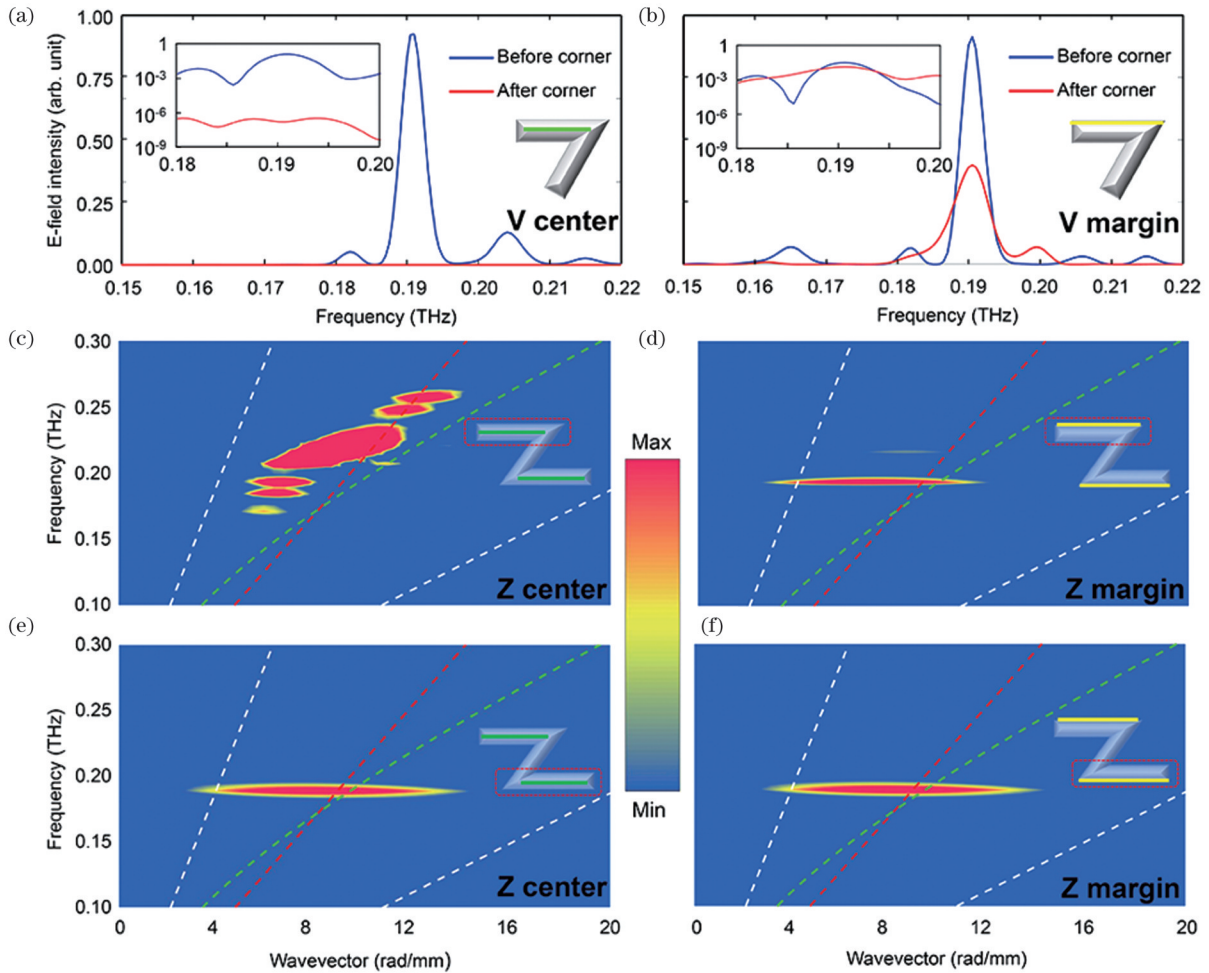


图 5 拓扑受激声子极化激元沿交界面的传输性质^[43]。(a),(b)V型谷光子晶体中经过大角度弯折前后沿交界面中心和边缘的频谱图,其中插图为指数坐标下0.18~0.20 THz的频谱;(c),(e)沿Z型谷光子晶体交界面上沿中心和下沿中心的色散曲线,白色虚线表示铌酸锂晶片中的光锥,绿色和红色虚线表示铌酸锂晶片中的基础模式和飞秒激光;(d),(f)沿Z型谷光子晶体交界面上沿边缘和下沿边缘的色散曲线

Fig. 5 Propagating features of topological stimulated phonon polaritons along interface^[43]. (a), (b) Spectra at center and margin of interface before and after the first corner in V-type VPC, respectively, where insets show spectra in exponential coordinates from 0.18 to 0.20 THz; (c), (e) dispersion curves along center of top and bottom edges in Z-type VPC, where white dashed lines indicate light cone of LiNbO₃ slab, green and red dashed lines represent fundamental mode and femtosecond laser in LiNbO₃ slab, respectively; (d), (f) dispersion curves along margin of top and bottom edges in Z-type VPC

分别表示正向入射和反向入射的情况。在图 6(e)所示的透射比曲线中,透射比大于 100 的频谱范围为 0.28~0.38 THz,频谱宽度可达 100 GHz,说明该设计可以在宽带范围内实现受激声子极化激元的单向传输调控。如图 6(f)所示,不同长度天线的散射场覆盖 0~ π 的相位变化,通过适当的长度选择,使相邻天线的散射场保持恒定的相位差 $\Delta\phi$,就能在波导表面提供单向动量 $\Delta\phi/\Lambda_x$,从而满足正向入射下的模式转换和单向传输所需的动量匹配条件。

除了动量匹配外,渐变超表面中天线散射电场的空间分布对受激声子极化激元的模式转换和单向传输有着至关重要的影响^[50],主要通过自由度 g 和 θ 来调控。如图 7(a)所示,当 g 和 θ 均为 0 时,渐变超表面中天线的散射场与波导中的标准模式不存在空间交叠,

无法形成稳定传输的波导模式。而当 g 和 θ 发生改变时,例如 $g=20 \mu\text{m}$ 和 $\theta=40^\circ$,天线的散射场与波导中 TE₁₀ 模式的电场分布发生交叠,形成稳定的模场分布,如图 7(b)所示。通过合适的参数设计,就能够实现波导中任意两个模式的单向转换和传输。值得注意的是,调节自由度对反向入射的结果几乎没有影响,这是因为在反向入射下,动量匹配条件并不满足,始终无法实现波导模式的转换和传输。只有当动量匹配和模场分布重叠同时满足时,才能实现受激声子极化激元高效的模式转换和单向传输。图 7(c)~图 7(e)分别展示了实验中受激声子极化激元在两种端口入射时,经过渐变超表面前后的色散曲线图。在入射区域,受激声子极化激元在铌酸锂亚波长矩形波导中主要以 TE₀₀ 模式进行传输。当正向入射经过超表面后,TE₀₀ 模式

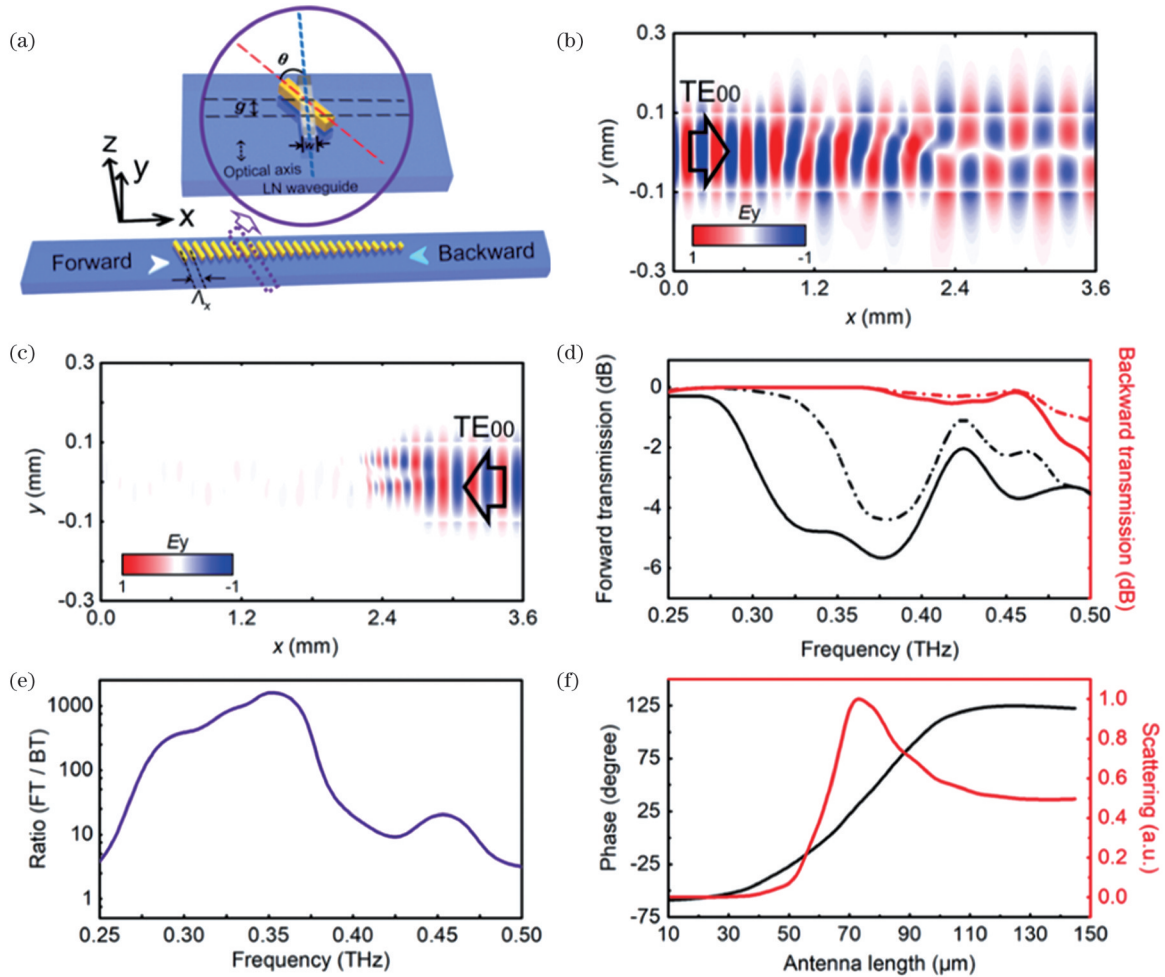


图6 受激声子极化激元的单向传输^[49]。(a)结构设计示意图;(b),(c)正向传输和反向传输中电场分布剖面图;(d)不同传输方向的透射率;(e)正向传输和反向传输的透射比;(f)不同长度天线的散射场
 Fig. 6 Unidirectional transmission of stimulated phonon polaritons^[49]. (a) Schematic diagram of structural design; (b), (c) profile view of electric field distribution in forward and backward transmission, respectively; (d) transmission spectra in different propagation directions; (e) forward-backward transmittance ratio; (f) scattered field from antennas of different lengths

转换为 TE_{10} 模式,而在反向入射时,由于动量不匹配,几乎没有能量通过。该设计方案还可以通过改变铌酸锂亚波长矩形波导的尺寸来实现 TE 模式到 TM 模式的转换,具备模式转换和单向传输的有效性和普适性。此外,考虑到在模式转换的单向传输中,渐变超表面的有效作用距离由天线阵列的总长度决定,仅为毫米量级,这极大程度地缩减了样品尺寸,为太赫兹波传输调控的小型化、集成化发展提供了可能。

5.3 “类时域孤子——冻结相位”传输

在太赫兹脉冲的传输过程中,一阶色散通常会引起相位的变化,究其原因是因为脉冲的群速度与相速度存在差异^[51]。在实验中调控脉冲的相速度较为困难且同时会对群速度产生影响,相比之下,改变太赫兹脉冲的群速度较为方便,可以通过设置移动的太赫兹源来实现。当太赫兹源的移动速度与太赫兹的相速度保持同步时,就能够使得太赫兹脉冲的群速度与相速度相等。然而想要实现太赫兹脉冲的相位在传播过程中保持不变,还需要控制移动光源的初始相位为定值。

由飞秒激光泵浦铌酸锂产生的受激声子极化激元的电场信号正比于飞秒激光的功率 $E_{\text{THz}} \propto |E_{\text{laser}}|^2$,而与飞秒激光的相位无关^[52],即受激声子极化激元是初始相位锁定的太赫兹源。结合侧向激发的实验配置与物理机制,本团队在铌酸锂亚波长平板波导中实现了受激声子极化激元的“冻结相位”传输^[53],形成了类似时域孤子的传输行为。

如图 8(a)~图 8(c)所示,在侧向激发条件下,飞秒激光与窄带受激声子极化激元在铌酸锂亚波长平板波导中以相同的速度沿 x 轴向前传输,形成了初始相位不变的同步窄带太赫兹源。而在如图 8(d)所示的宽带激发时,飞秒激光沿厚度方向(y 轴)穿过铌酸锂晶体,由于切伦科夫辐射被抑制,受激声子极化激元向 x 轴两侧传输,等效于初始相位不变的静止宽带太赫兹源。如图 8(e)和图 8(f)所示,受激声子极化激元一旦离开源区开始传输,其相位就会由于一阶色散而发生改变。在色散体系中,相速度通常表现出强烈的频率依赖性,所以可以通过调制太赫兹源的群速度补偿抵

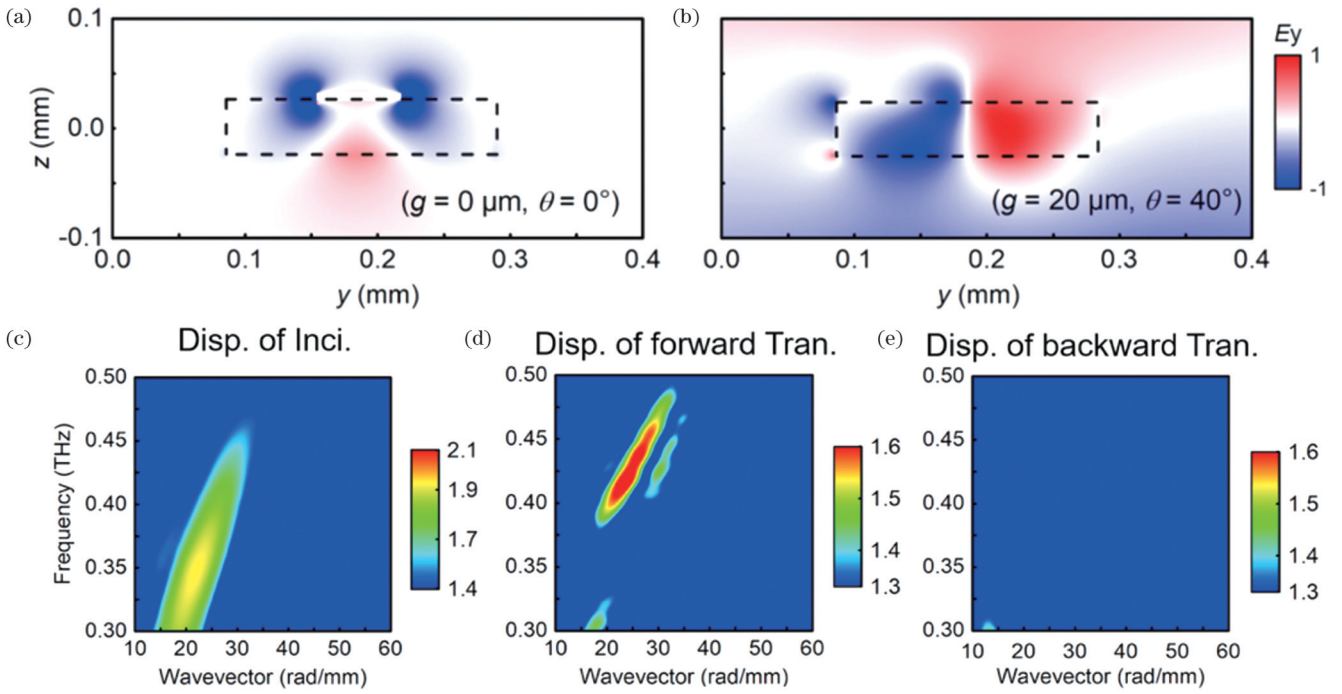


图 7 单向传输中的电场分布和色散曲线^[49]。(a),(b)天线在不同偏移和旋转条件下的散射场分布;(c)受激声子极化激元在入射区域的色散曲线;(d),(e)受激声子极化激元正向传输和反向传输在透射区域的色散曲线

Fig. 7 Electric field distribution and dispersion curves of unidirectional transmission^[49]. (a), (b) Spatial scattered electric field distribution of antennas with different offsets and rotations; (c) dispersion curves of stimulated phonon polaritons in incidence region; (d), (e) dispersion curves of stimulated phonon polaritons in transmitted region of forward and backward transmission

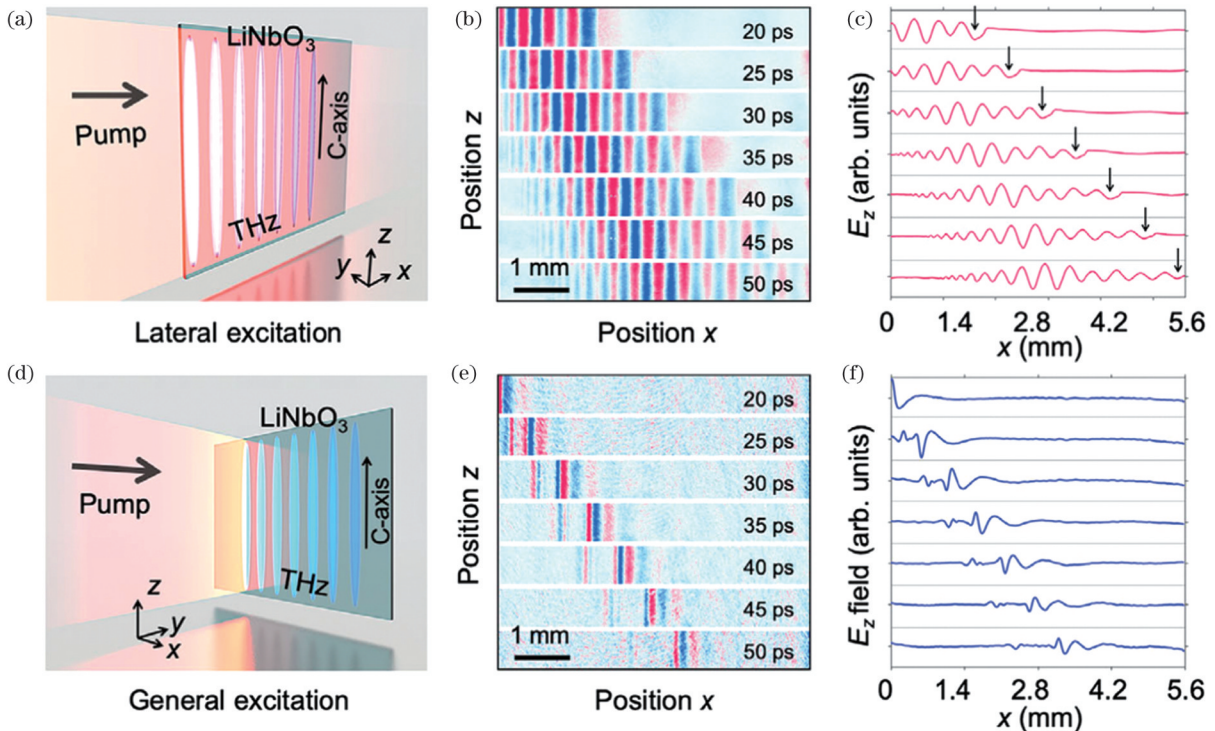


图 8 不同激发方式下受激声子极化激元的传输行为^[53]。(a),(d)实验配置示意图;(b),(e)可视化图像;(c),(f)电场波形图

Fig. 8 Propagation behavior of stimulated phonon polaritons under different excitation methods^[53]. (a), (d) Schematic diagram of experimental setup; (b), (e) visualization images; (c), (f) electric field waveforms

消特定频率的一阶色散效应,实现特定频率的“冻结相位”传输。如图 9(a)和图 9(b)所示,在侧向激发配置下,由于一阶色散被抵消,受激声子极化激元不再按

酸锂亚波长平板波导所示的波导模式传输,而是按飞秒激光的模式传输。这种差异的原因是飞秒激光在受激声子极化激元的产生过程中提供了主动驱动,并显

著提高了其群速度。而在宽带激发配置下,如图 9(c)所示,一阶色散没有被抵消,受激声子极化激元主要是以波导的基础模式进行传输,无法实现“冻结相位”效应。值得注意的是,理想情况下,“冻结相位”传输效应将在以特定频率为中心的一定频率范围内实现,然而在实验和模拟中表现出不同的结果,如图 9(a)和图 9(b)所示。在实验中,群速度提高和传输模式改变主要发生在 0.26 THz 及其低频区域,而在模拟中发生在高频区域。这是因为在实验中需要对飞秒激光进行聚焦,焦点后的激光面临空间散焦、能量衰减等问题,导致受激声子极化激元的产生源在移动过程中面临较大的衰

减,无法对高频信号进行有效调制。而在模拟中虽然可以避免损耗问题但却无法真实还原空间连续的光源,光源只能以离散的形式存在,这就导致在数据处理的过程中无法对低频信号完成正确复现。图 9(d)显示了“冻结相位”传输中受激声子极化激元光谱,实验和模拟中的中心频率均为 0.26 THz,具有一致性。模拟中光谱在较高频率下的拖尾现象就是由光源离散化设置导致的。通过色散补偿实现对太赫兹脉冲的相位控制,为未来信息加载与传递提供了可能,同时也为非线性混频过程中的相位匹配提供了新的解决方案。

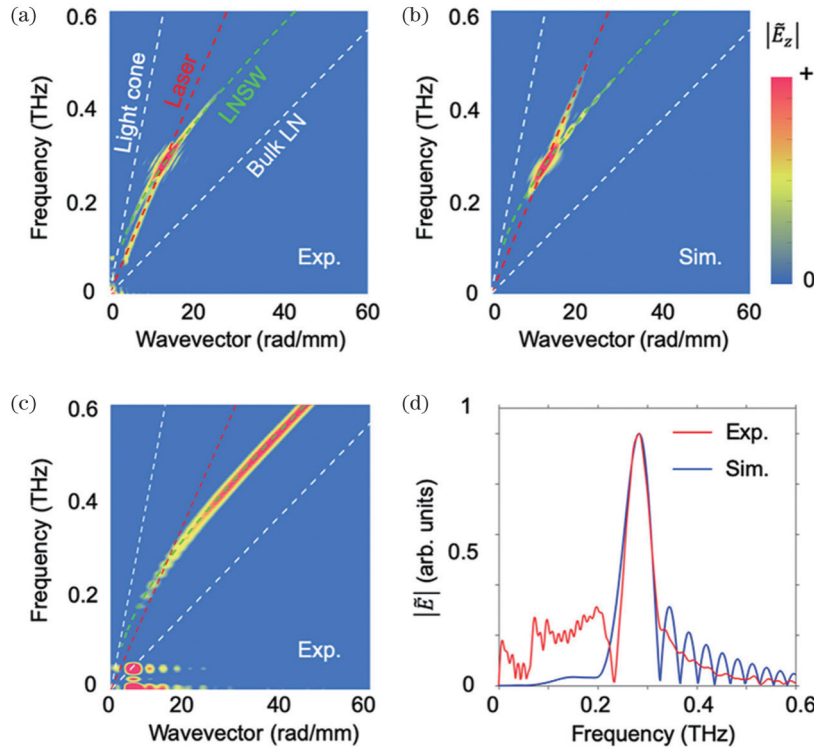


图 9 不同激发方式下受激声子极化激元的色散曲线^[53]。(a)侧向激发的实验结果;(b)侧向激发的模拟结果;(c)宽带激发的实验结果;(d)侧向激发在实验与模拟中的频谱

Fig. 9 Dispersion curves of stimulated phonon polaritons under different excitation methods^[53]. (a) Experimental results of lateral excitation; (b) simulation results of lateral excitation; (c) experimental results of broadband excitation; (d) spectra of lateral excitation in experiments and simulations

6 受激声子极化激元的非线性效应

6.1 受激声子极化激元介导光与物质相互作用新机制

在传统光与物质相互作用的研究中,通常采用玻恩-奥本海默近似的处理方法^[54],这是因为晶体中的离子与电子由于质量不同而对不同频段的光具有不同的响应结果。图 10(a)展示了玻恩-奥本海默近似下的光与物质相互作用机制,当可见光/红外光照射铌酸锂等离子晶体时,电子被入射光激发并与其发生相互作用,离子几乎无响应而保持“相对静止”。然而当太赫兹波入射时,晶体中离子足以对该频段的电磁振荡产生响应^[55],如图 10(b)所示,太赫兹波与声子进行强烈耦

合,以受激声子极化激元的形式存在,影响和改变离子原本的状态。进而如图 10(c)所示,电子的状态会通过离子-电子耦合而被改变,这种状态下玻恩-奥本海默近似就会被打破。

为描述离子晶体中受激声子极化激元参与的光与物质相互作用,本团队提出了受激声子极化激元介导的光与物质相互作用新机制。在太赫兹波与离子晶体的相互作用中,受激声子极化激元是通过非线性黄昆方程式(3)和式(4)来描述的。将式(4)代入 $D = \epsilon_0 E + P$ 可得:

$$D = \epsilon_{(\infty)} E + (Nm)^{1/2} b_{21} x_0 \quad (7)$$

根据无源情况下的麦克斯韦方程组可得

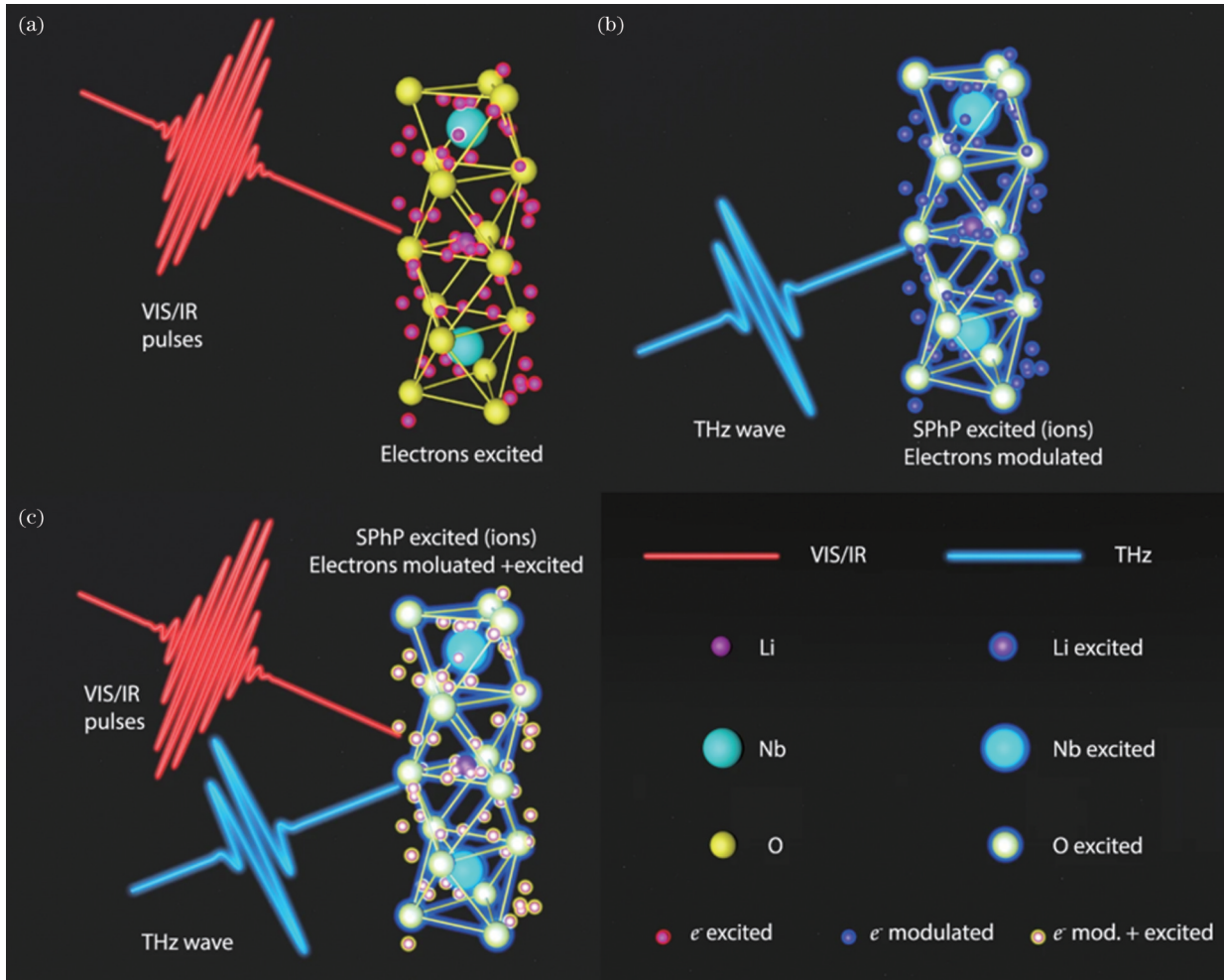


图 10 铌酸锂晶体中受激声子极化激元介导的光与物质相互作用机制图^[21]。(a)传统光与物质相互作用机制;(b)由太赫兹波激发的受激声子极化激元介导的光与物质相互作用机制;(c)在太赫兹波激发受激声子极化激元下,可见光/红外光与铌酸锂的相互作用机制

Fig. 10 Diagram of stimulated phonon polariton-mediated light-matter interaction (LMI) in LiNbO₃ crystal^[21]. (a) Traditional light-matter interaction mechanism; (b) stimulated phonon polariton-mediated light-matter interaction mechanism excited by THz waves; (c) stimulated phonon polariton-mediated light-matter interaction mechanism excited by visible/infrared light with THz waves exciting stimulated phonon polaritons

$$\frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2} = -\frac{1}{\mu_0} \nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = \frac{1}{\mu_0} \nabla^2 \mathbf{E}. \quad (8)$$

结合式(7)和式(8)可以从非线性黄昆方程式(3)和式(4)中消去极化场 \mathbf{P} , 改写为^[26]

$$-\omega^2 x - j\gamma\omega x + \omega_0^2 x = (Nm)^{-1/2} b_{12} \mathbf{E} - ax^2 + (q/m) \mathbf{E}_T, \quad (9)$$

$$-\epsilon_0 \mu_0 \omega^2 \epsilon_{(\infty)} \mathbf{E} - \omega^2 \mu_0 (Nm)^{1/2} b_{21} x - \nabla^2 \mathbf{E} = 0. \quad (10)$$

使用非线性光学中的常规方法,假设 $x = x_0 e^{-j\omega t}$ 和 $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 e^{-j\omega t}$, ω 为驱动太赫兹场的角频率,其中 x_0 和 \mathbf{E}_0 与 t 无关,考虑非磁性材料时,真空的磁导率 $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$ H/m。假定宏观电场 \mathbf{E} 在空间中的传播被描述为 $e^{i\sqrt{\epsilon_{(0)}}kr}$, 则其对空间的导数可以化简为 $\nabla^2 \mathbf{E} = -\epsilon_{(0)} k^2 \mathbf{E} = -\epsilon_{(0)} (\omega^2/c^2) x$, 代入式(10)可以得到

$$\frac{\epsilon(0) - \epsilon(\infty)}{c^2} \mathbf{E} = \mu_0 (Nm)^{1/2} b_{21} x, \quad (11)$$

式中: $c = 1/\sqrt{\epsilon_0 \mu_0}$ 表示真空中的光速。

可以得出 $(Nm)^{-1/2} b_{12} \mathbf{E} = \omega_0^2 x$, 代入式(9)可以得到

$$-\omega^2 x - j\gamma\omega x = -ax^2 + (q/m) \mathbf{E}_T. \quad (12)$$

这说明太赫兹波与声子的耦合项会与恢复力项相抵消,离子振动方程最终具有德鲁德方程形式,这意味着在声子极化激元作用下,离子获得了很强的离域性,强离域性会带来高迁移率。需要指出的是这里的高迁移率指的是离子状态可以在晶体中快速传输,而不是离子在晶体中传输。而且太赫兹波在晶体中传输时会通过光声耦合使得晶体中原本非相干的离子振荡变为相干,这表明受激声子极化激元具有很强的时空相干性。

6.2 受激声子极化激元介导新机制下的新效应

6.2.1 巨非线性效应

受激声子极化激元使离子获得了高迁移率,增强了非线性极化和非线性效应。本团队利用受激声子极

化激元实现了太赫兹波的巨非线性效应^[26]。如图 11(a)所示,通过改变光栅倾斜波前的夹角 α ,使飞秒激光的速度分量同时与 33 μm 厚铌酸锂平板波导中的 TE_0 和 TE_1 模式相匹配,产生中心频率分别为 $\nu_0=0.35$ THz 和 $\nu_1=1.11$ THz 的强场窄带太赫兹波。时空超分辨率成像系统记录下了 ν_0 与 ν_1 差频过程的时空演化过

程,如图 11(b)所示。将其进行二维傅里叶变换,得到图 11(c)的色散曲线图。在色散曲线图中,除了由飞秒激光泵浦产生的两个波导模式的信号外,还存在虚线圆圈标注的不与任何波导模式匹配的太赫兹波信号,这是 TE_0 和 TE_1 模式的差频信号,频率在 $\nu_d=\nu_1-\nu_0=0.76$ THz 附近。

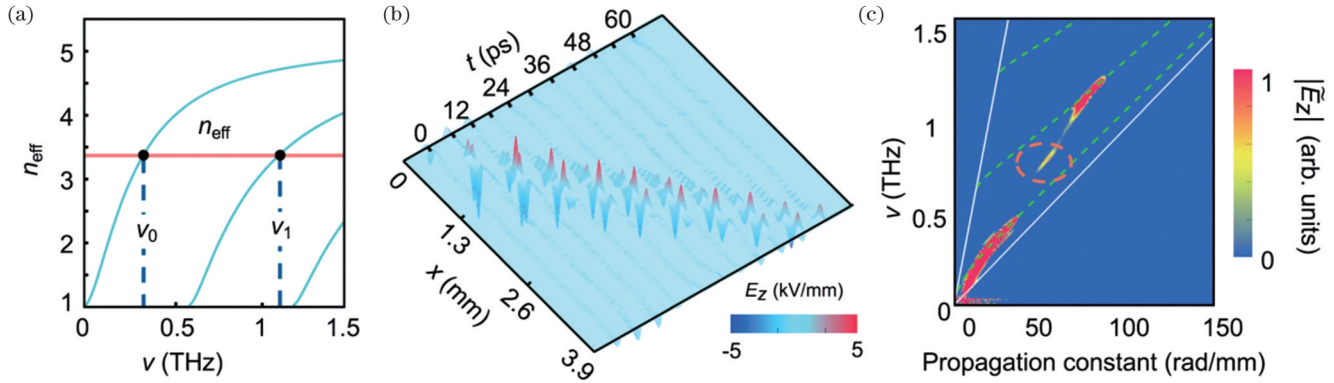


图 11 非线性太赫兹波产生的实验结果^[26]。(a)速度匹配的选择;(b)太赫兹波在铌酸锂波导中时空传播的实验观察;(c)太赫兹波的色散关系,差频信号由虚线圆圈标记

Fig. 11 Experimental results of generation of THz nonlinear waves^[26]. (a) Selection of velocity matching; (b) experimental observations of spatiotemporal propagation of THz waves in LiNbO_3 waveguide; (c) dispersion relation of THz waves, where difference frequency generation signal is marked by dashed circle

如图 12(a)所示,选定太赫兹波的产生区为零点,通过提取不同位置处的太赫兹波的时域振荡可以发现,由于群速度的不同,高频信号和低频信号在传输过

程中会发生分离。对时间信号进行傅里叶变换得到的频谱表明,波导中传输的太赫兹波既有飞秒激光激发的两个窄带太赫兹波成分,也有二者产生的差频成分,

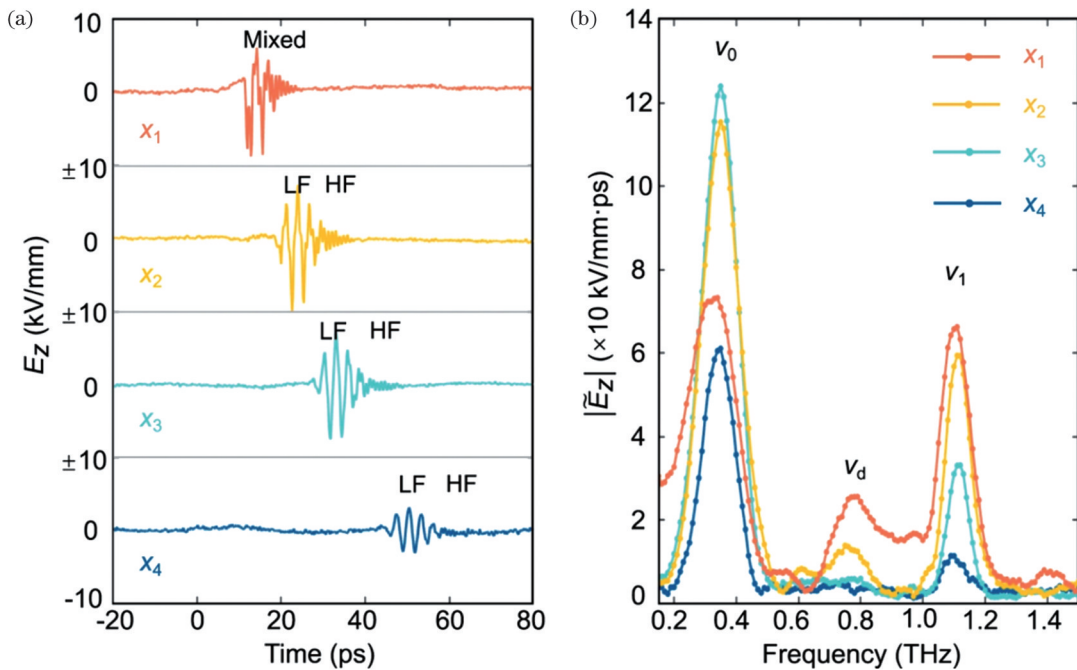


图 12 太赫兹波在不同位置随时间的演化及其相应的傅里叶光谱^[26]。(a)在相对于太赫兹波激发区域 $x_1=1.18$ mm, $x_2=1.82$ mm, $x_3=2.39$ mm 和 $x_4=3.44$ mm 处太赫兹波的电场振荡;(b)频率 ν_0 和 ν_1 以及差频信号在 4 个位置处的傅里叶光谱

Fig. 12 Evolution of THz optical field with time at different positions; and their corresponding Fourier spectra^[26]. (a) Field oscillation of THz waves as function of time at various positions of $x_1=1.18$ mm, $x_2=1.82$ mm, $x_3=2.39$ mm and $x_4=3.44$ mm relative to position where THz waves are generated; (b) corresponding Fourier spectra of THz waves at frequencies ν_0 and ν_1 , as well as their difference frequency generation signal at four positions

如图 12(b) 所示。由于铌酸锂中存在频率依赖性的吸收损耗,两个波导模式的信号随着传输逐渐衰减,差频信号因不受任何波导模式的支持而表现出更强的耗散。将 x_1 处光谱中每个频率分量拟合到高斯函数,通过傅里叶逆变换可以得到每个频率分量在时域中电场振荡的峰值分别为 $A_0(\nu_0)=3.289 \times 10^6$ V/m, $A_1(\nu_1)=1.713 \times 10^6$ V/m 和 $A_d(\nu_d)=0.935 \times 10^6$ V/m。根据非线性光学,并考虑到太赫兹波的产生和衰减,最终计算出二阶非线性极化率 $|\chi^{(2)}| > 1.58 \times 10^{-6}$ m/V,比可见光至少高 5 个数量级,比微波至少高 3 个数量级。太赫兹波非线性的巨幅增强可以由受激声子极化激元介导的光与物质相互作用机制来解释。在受激声子极化激元参与下,离子的振动方程由式(12)描述,定义 $D(\omega_i) = -\omega_i^2 - j\omega_i\gamma$,则线性极化率可以写成

$$\chi^{(1)}(\omega_i) = \frac{Nq^2}{\epsilon_0 m} \frac{1}{D(\omega_i)}, \quad i=1,2,3. \quad (13)$$

二阶非线性极化率可用 Miller 定律计算^[56], Miller 常数由下式给出:

$$\delta M = \frac{\chi^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2)}{\chi^{(1)}(\omega_1)\chi^{(1)}(\omega_2)\chi^{(1)}(\omega_3)}. \quad (14)$$

Miller 常数的大小由下式决定:

$$|\delta M| = \frac{ma\epsilon_0^2}{N^2q^3} \quad (15)$$

当 x 与晶格间距的数量级相同时,假设势能中的谐波项和非谐波项的数量级相等,可以得到参数 $a \approx \omega_0^2 N^{1/3}$ 。对于铌酸锂晶体,横向光学声子最低阶的共振频率 $\omega_0 = \omega_{TO} = 2\pi \times 7.6$ THz, $N = 6.29 \times 10^{27}$ m⁻³, 阻尼 $\gamma = 2\pi \times 0.84$ THz, 横光学声子是 A_1 软模, $m_+ = m(\text{Nb}^{5+}) = 93$ U, $m_- = 3m(\text{O}^{2-}) + m(\text{Li}^+) = 55$ U, 1 U = 1.66×10^{-27} kg, 电荷 $q = 5e$, 其中 $e = 1.60 \times 10^{-19}$ C, 离子折合质量 $m = (m_+ m_-) / (m_+ + m_-)$, 理论上太赫兹频率的二阶非线性极化率为 $|\chi_{pp}^{(2)}| = 1.70 \times 10^{-5}$ m/V, 实验结果与理论计算相吻合。

6.2.2 微腔品质因子提升

受激声子极化激元可以通过光声耦合使晶体中原本非相干的离子振荡变为相干。当离子一起相干振荡时,电磁振荡损耗将会降低,对于晶体微腔来说,损耗的降低将实现品质因子的提升^[21]。如图 13(a) 所示,本团队使用飞秒激光直写技术在 $50 \mu\text{m}$ 厚的铌酸锂平板波导上制作了 L3 型光子晶体微腔^[50], 晶格

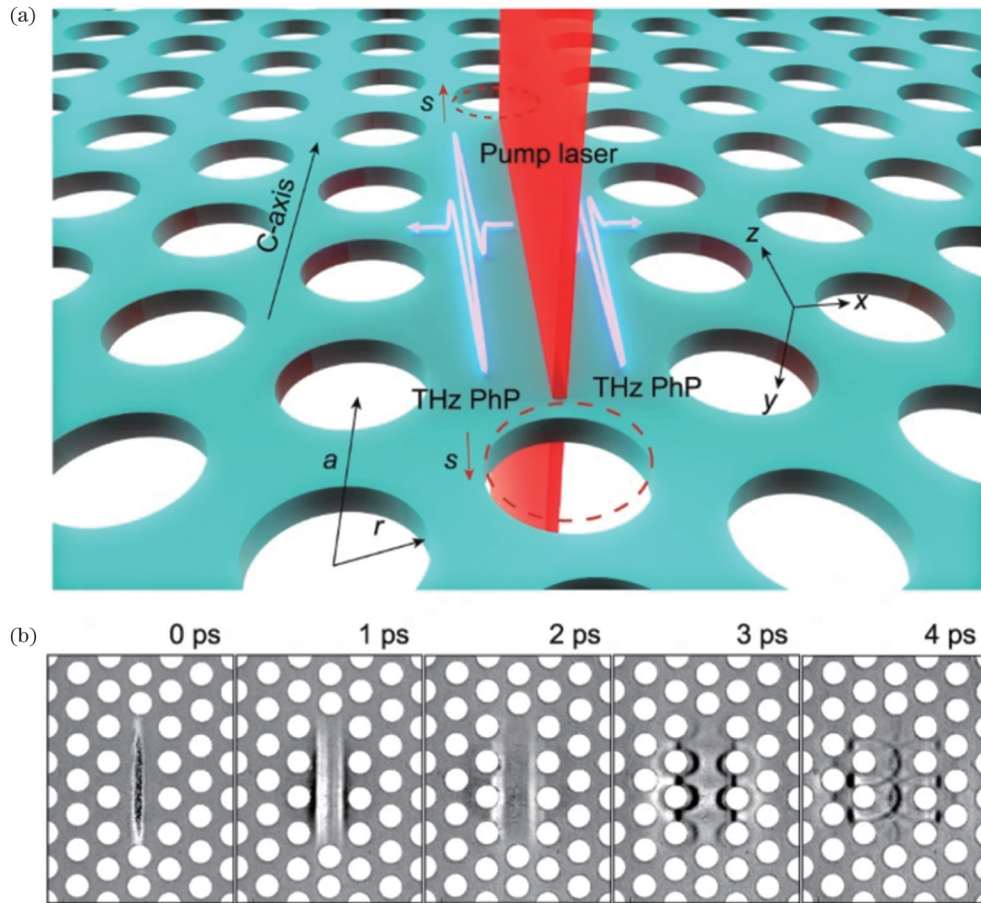


图 13 微腔设计和受激声子极化激元的时间演化^[21]。(a) 泵浦激光与微腔的实验配置示意图,其中晶格常数 $a=170 \mu\text{m}$, $r=50 \mu\text{m}$, $s=0.15r$; (b) 微腔中受激声子极化激元的时间演化

Fig. 13 Experimental design of microcavity and temporal evolution of stimulated phonon polaritons^[21]. (a) Illustration of pump laser and layout of microcavity, where $a=170 \mu\text{m}$, $r=50 \mu\text{m}$, $s=0.15r$; (b) temporal evolution of stimulated phonon polaritons in microcavity

常数为 $170\ \mu\text{m}$, 单位半径 $r=50\ \mu\text{m}$, 位移 $s=0.15r$ 。飞秒激光经线聚焦泵浦铌酸锂后, 受激声子极化激元沿着 x 轴双向传播, 到达边界后只有与微腔模式相匹配的频率成分才会被反射保留, 其他成分将快速泄漏和衰减, 时空演变过程如图 13(b) 所示。光子晶体的能带图如图 14(a) 所示, 带隙在 $0.375\sim 0.490\ \text{THz}$ 之间, 用阴影区域标记。选取腔中一点, 记录该点的电场振荡, 如图 14(b) 所示。对时域信号进

行傅里叶变换得到图 14(c) 所示的腔中频谱, 可以得到微腔的品质因子为 68.83 。图 14(d) 显示了腔中电场的频域分布。然而在实验中无法阻止声子与太赫兹波耦合, 因此只能通过时域有限差分法模拟微腔中的电磁波行为, 为了确保一致性, 模拟中微腔的几何结构与实验保持一致, 模拟结果如图 14(e) 所示, 仅考虑电磁波时微腔的品质因子为 46.78 , 与理论预期相互吻合。

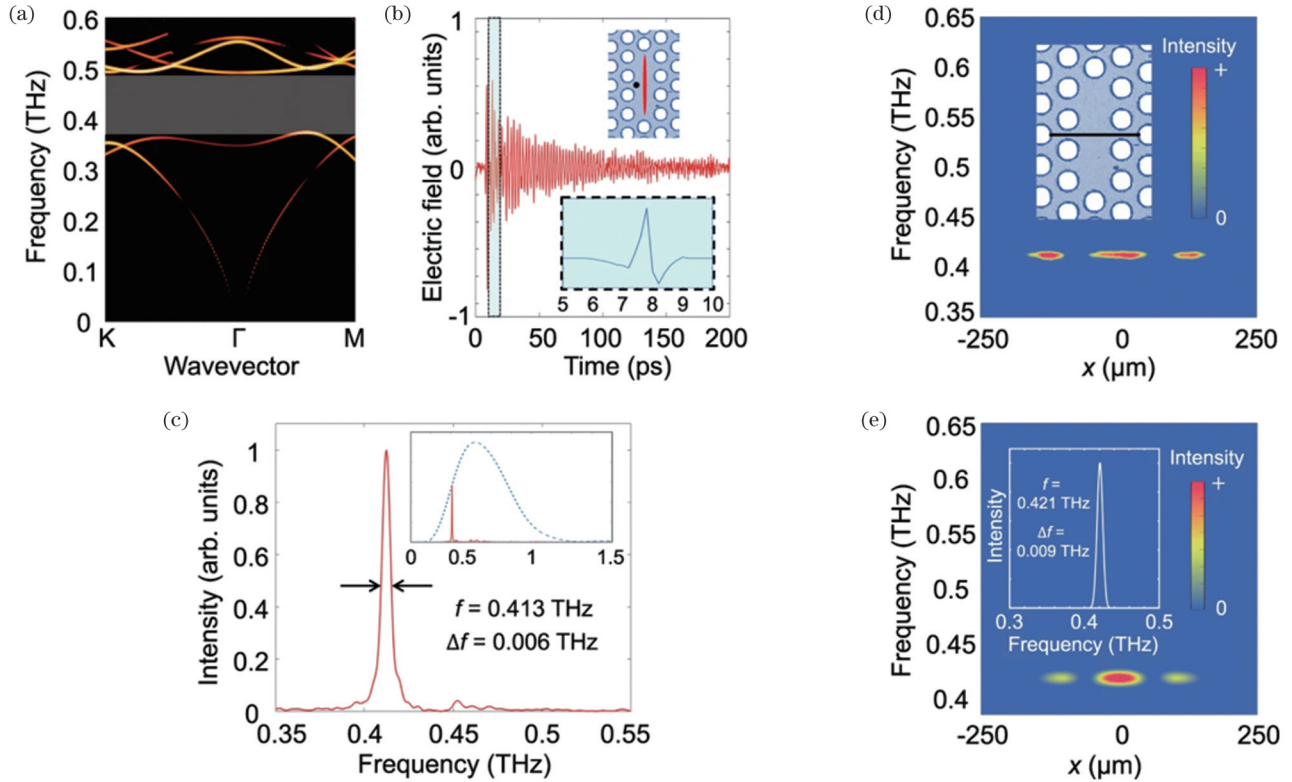


图 14 微腔中受激声子极化激元的实验结果与仅考虑电磁波模拟结果^[21]。(a) 铌酸锂光子晶体的能带; (b) 微腔中参考点的电场振荡; (c) 微腔中局域受激声子极化激元的光谱信息, 插图为宽带和局域受激声子极化激元的光谱对比; (d) 微腔中插图所示线处的光谱信息; (e) 沿着微腔中参考线和参考点的光谱

Fig. 14 Experimental stimulated phonon polaritons and simulated electromagnetic waves in microcavity^[21]. (a) Energy bands of LiNbO_3 photonic crystal; (b) electric field oscillation of reference point in microcavity; (c) spectral information of microcavity confined stimulated phonon polaritons, where inset presents spectral comparison between broadband and localized phonon polaritons; (d) spectral information at line shown by inset, in microcavity; (e) spectral information along reference line and at reference point in microcavity

6.2.3 调制电子非线性

受激声子极化激元可以通过离子-电子耦合调制电子态, 即调制电子的非线性。本团队利用光栅倾斜波前技术证明了受激声子极化激元能够增强铌酸锂在近红外波段的倍频效应^[21]。如图 15(a) 所示, 飞秒激光聚焦泵浦铌酸锂晶体后将产生二次谐波信号, 利用倾斜波前技术可以区分激光功率和受激声子极化激元的贡献。

飞秒激光经过光栅衍射后, 再通过透镜聚焦, 在将铌酸锂晶体从光栅的像平面移动到透镜焦平面的过程中, 二次谐波的信号强度不断变化, 如图 15(b) 所示, 存在两个极值位置, 分别为光栅的像平面和透镜的焦

平面。根据光栅倾斜波前中的相位匹配条件, 只有当铌酸锂晶体放置在光栅的像平面时, 受激声子极化激元才能被高效激发, 可以探测到飞秒激光较强的二次谐波信号。而后在铌酸锂晶体移近透镜焦平面的过程中, 虽然飞秒激光的功率密度增加, 但二次谐波信号没有持续加强, 而是在透镜的焦平面附近突然增强, 这是由飞秒激光的高功率密度引起的。经计算, 光栅像平面处由于受激声子极化激元的存在, 铌酸锂二阶非线性增强了约 4.8×10^5 倍。二次谐波信号的峰值强度和总平均能量取决于铌酸锂样品的位置, 如图 15(c) 所示。

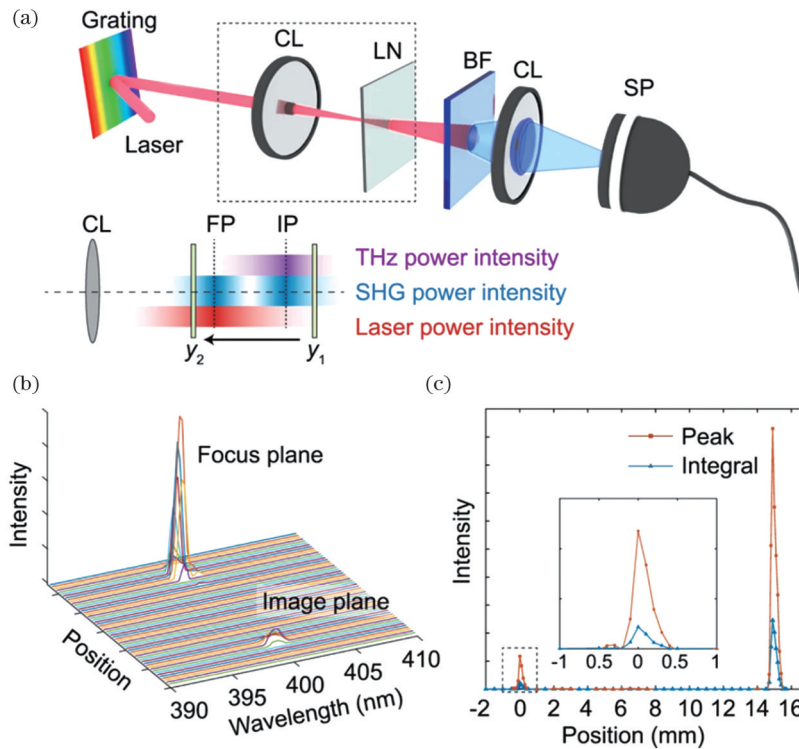


图 15 受激声子极化激元介导的光与物质相互作用对近红外激光脉冲二次谐波产生的增强^[21]。(a)实验装置示意图;(b)铌酸锂晶体移动过程中的二次谐波频谱;(c)铌酸锂晶体移动过程中二次谐波信号的峰值强度和总能量

Fig. 15 Second-harmonic generation (SHG) enhancement of near-infrared laser pulses due to stimulated phonon polariton-mediated light-matter interaction^[21]. (a) Schematic of experimental setup; (b) spectra of SHG signal obtained by moving LiNbO₃ slab; (c) peak intensity and total energy of SHG signal when sample is moved

7 总结与展望

作为未来无线通信、空间探测、安检成像、光谱传感、生物医学等领域的关键技术之一,强场太赫兹科学引起了科研界的广泛关注,在获得快速发展的同时也面临着较大的机遇与挑战。太赫兹波在传输过程中除信号衰减外,还将面临能量散射、模式畸变、相位偏移等问题。实现太赫兹波的高质量信号传输和有效调控,是推动太赫兹技术实用化发展的重要技术基础。与电子学相比,太赫兹频段的应用器件受到电子质量的限制而功耗较大,工作效率难以提高;与光子学相比,现有的太赫兹源较弱,并且具有频率较低、波长较长、时空聚焦极限较大等特点,在非线性和调控方面也存在诸多困难。此外,随着未来科学研究中光与物质相互作用的时空尺度越来越小,应用器件的集成化要求越来越高,传统光学中常用的标量近似、振幅慢变近似等稳态光学的方程和概念将不再适用,促使着对于太赫兹的相关研究进入“瞬态亚波长光学”领域。

本文回顾了铌酸锂亚波长晶片上太赫兹波的传输控制和非线性效应增强等工作,这些工作标志着对于太赫兹波的研究已经进入到瞬态亚波长尺度,有助于更深层次地理解和应用强场太赫兹科学,有望带来全新的理论和技术突破。其中起主导作用的就是受激声子极化激元。离子晶体中的受激声子极化激元,既是

凝聚态物理中元激发的延续发展,也是太赫兹非线性物理未来发展中的重要一支。受激声子极化激元能够打破传统物理上的玻恩-奥本海默近似,实现一种全新的光与物质相互作用机制,将声子极化激元这一原本只影响材料光谱与热容的元激发变成了真正参与光与物质相互作用的受激声子极化激元。通过与强场太赫兹波的交叉融合,受激声子极化激元可以通过改变光与物质相互作用过程提高非线性极化率,有望实现太赫兹非线性效应的进一步增强。非线性黄昆方程是对黄昆方程的进一步发展,它表明通过受激声子极化激元实现的光与物质相互作用机制不仅适用于描述太赫兹波与晶体材料之间的相互作用,还可用于对材料的全方位调控,既包括对晶体材料在高频段(可见和近红外)光学性质的调控,又包括对材料光热、光力、光声、铁磁/铁电及量子性质的调控以及对极化激元量子比特的非线性操控,有望未来在太赫兹科学与技术的发展中继续迎来重大进展与突破。

参 考 文 献

- [1] Li X, Qiu T, Zhang J H, et al. Terahertz field-induced ferroelectricity in quantum paraelectric SrTiO₃[J]. Science, 2019, 364(6445): 1079-1082.
- [2] Han P, Wang X K, Zhang Y. Time-resolved terahertz spectroscopy studies on 2D van der Waals materials[J]. Advanced Optical Materials, 2020, 8(3): 1900533.
- [3] Liu Y, Liu H, Tang M Q, et al. The medical application of

- terahertz technology in non-invasive detection of cells and tissues: opportunities and challenges[J]. RSC Advances, 2019, 9(17): 9354-9363.
- [4] Neu J, Schmuttenmaer C A. Tutorial: an introduction to terahertz time domain spectroscopy (THz-TDS) [J]. Journal of Applied Physics, 2018, 124(23): 231101.
- [5] Peng Y, Shi C J, Zhu Y M, et al. Terahertz spectroscopy in biomedical field: a review on signal-to-noise ratio improvement[J]. Photonix, 2020, 1(1): 12.
- [6] Siegel P H. Terahertz technology in biology and medicine[J]. IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 2004, 52(10): 2438-2447.
- [7] Watts C M, Shrekenhamer D, Montoya J, et al. Terahertz compressive imaging with metamaterial spatial light modulators[J]. Nature Photonics, 2014, 8(8): 605-609.
- [8] Suzuki D, Oda S, Kawano Y. A flexible and wearable terahertz scanner[J]. Nature Photonics, 2016, 10(12): 809-813.
- [9] Ma J J, Shrestha R, Adelberg J, et al. Security and eavesdropping in terahertz wireless links[J]. Nature, 2018, 563(7729): 89-93.
- [10] Dang S P, Amin O, Shihada B, et al. What should 6G be? [J]. Nature Electronics, 2020, 3(1): 20-29.
- [11] Hafez H A, Kovalev S, Deinert J C, et al. Extremely efficient terahertz high-harmonic generation in graphene by hot Dirac fermions[J]. Nature, 2018, 561(7724): 507-511.
- [12] Lee K, Son J, Park J, et al. Linear frequency conversion via sudden merging of meta-atoms in time-variant metasurfaces[J]. Nature Photonics, 2018, 12(12): 765-773.
- [13] Yang Y H, Yamagami Y, Yu X B, et al. Terahertz topological photonics for on-chip communication[J]. Nature Photonics, 2020, 14(7): 446-451.
- [14] Cong L Q, Singh R. Spatiotemporal dielectric metasurfaces for unidirectional propagation and reconfigurable steering of terahertz beams[J]. Advanced Materials, 2020, 32(28): 2001418.
- [15] Xu S T, Fan F, Chen M, et al. Terahertz polarization mode conversion in compound metasurface[J]. Applied Physics Letters, 2017, 111(3): 031107.
- [16] Liu W Y, Yang Q L, Xu Q, et al. Multifunctional all-dielectric metasurfaces for terahertz multiplexing[J]. Advanced Optical Materials, 2021, 9(19): 2100506.
- [17] Cai X D, Tang R, Zhou H Y, et al. Dynamically controlling terahertz wavefronts with cascaded metasurfaces[J]. Advanced Photonics, 2021, 3(3): 036003.
- [18] Zeng H X, Liang H J, Zhang Y X, et al. High-precision digital terahertz phase manipulation within a multichannel field perturbation coding chip[J]. Nature Photonics, 2021, 15(10): 751-757.
- [19] 吴晓君, 任泽君, 孔德胤, 等. 铌酸锂强场太赫兹光源及其应用[J]. 中国激光, 2022, 49(19): 1914001.
- Wu X J, Ren Z J, Kong D Y, et al. Lithium niobate strong-field terahertz source and its applications[J]. Chinese Journal of Lasers, 2022, 49(19): 1914001.
- [20] Khurgin J B. Nonlinear optics from the viewpoint of interaction time[J]. Nature Photonics, 2023, 17(7): 545-551.
- [21] Lu Y, Wu Q, Xiong H, et al. Light-matter interaction beyond Born-Oppenheimer approximation mediated by stimulated phonon polaritons[J]. Communications Physics, 2022, 5: 299.
- [22] 玻恩, 黄昆. 晶格动力学理论[M]. 葛惟锬, 贾惟义, 译. 北京: 北京大学出版社, 1989.
- Born M, Huang K. Dynamical theory of crystal lattices[M]. Ge W K, Jia W Y, Transl. Beijing: Peking University Press, 1989.
- [23] 甘子钊. 极化激元研究的进展: 纪念黄昆先生 90 诞辰[J]. 物理, 2009, 38(8): 581-591.
- Gan Z Z. Progress in polaron research—in memory of Mr. Huang Kun's 90th birthday[J]. Physics, 2009, 38(8): 581-591.
- [24] Huang K. Lattice vibrations and optical waves in ionic crystals[J]. Nature, 1951, 167(4254): 779-780.
- [25] Huang K. On the interaction between the radiation field and ionic crystals[J]. Proceedings of the Royal Society of London Series A Mathematical and Physical Sciences, 1951, 208(1094): 352-365.
- [26] Lu Y, Zhang Q, Wu Q, et al. Giant enhancement of THz-frequency optical nonlinearity by phonon polariton in ionic crystals[J]. Nature Communications, 2021, 12: 3183.
- [27] Auston D H, Cheung K P, Valdmanis J A, et al. Cherenkov radiation from femtosecond optical pulses in electro-optic media[J]. Physical Review Letters, 1984, 53(16): 1555-1558.
- [28] Feurer T, Vaughan J C, Nelson K A. Spatiotemporal coherent control of lattice vibrational waves[J]. Science, 2003, 299(5605): 374-377.
- [29] Dougherty T P, Wiederrecht G P, Nelson K A. Impulsive stimulated Raman scattering experiments in the polariton regime [J]. Journal of the Optical Society of America B, 1992, 9(12): 2179-2189.
- [30] Crimmins T F, Stoyanov N S, Nelson K A. Heterodyned impulsive stimulated Raman scattering of phonon-polaritons in LiTaO₃ and LiNbO₃[J]. The Journal of Chemical Physics, 2002, 117(6): 2882-2896.
- [31] Stepanov A G, Bonacina L, Chekalin S V, et al. Generation of 30 μJ single-cycle terahertz pulses at 100 Hz repetition rate by optical rectification[J]. Optics Letters, 2008, 33(21): 2497-2499.
- [32] 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.
- [33] Yang C L, Wu Q, Xu J J, et al. Experimental and theoretical analysis of THz-frequency, direction-dependent, phonon polariton modes in a subwavelength, anisotropic slab waveguide[J]. Optics Express, 2010, 18(25): 26351-26364.
- [34] 张琦, 吴强, 张斌, 等. 铌酸锂芯片上的太赫兹集成和时空超分辨成像[J]. 中国激光, 2019, 46(5): 0508003.
- Zhang Q, Wu Q, Zhang B, et al. Terahertz integration and spatio-temporal super-resolution imaging on LiNbO₃ chip[J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(5): 0508003.
- [35] Dastrup B S, Sung E R, Wulf F, et al. Enhancement of THz generation in LiNbO₃ waveguides via multi-bounce velocity matching[J]. Light: Science & Applications, 2022, 11: 335.
- [36] Hebling J, Almasi 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.
- [37] 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.
- [38] Wu X J, Kong D Y, Hao S B, et al. Generation of 13.9-mJ terahertz radiation from lithium niobate materials[J]. Advanced Materials, 2023, 35(23): 2208947.
- [39] Lin K H, Werley C A, Nelson K A. Generation of multicycle terahertz phonon-polariton waves in a planar waveguide by tilted optical pulse fronts[J]. Applied Physics Letters, 2009, 95(10): 103304.
- [40] Yang H M, Qi J W, Pan C P, et al. Efficient generation and frequency modulation of quasi-monochromatic terahertz wave in lithium niobate subwavelength waveguide[J]. Optics Express, 2017, 25(13): 14766-14773.
- [41] Wu Q, Werley C A, Lin K H, et al. Quantitative phase contrast imaging of THz electric fields in a dielectric waveguide[J]. Optics Express, 2009, 17(11): 9219-9225.
- [42] Wu Q, Chen Q Q, Zhang B, et al. Terahertz phonon polariton imaging[J]. Frontiers of Physics, 2013, 8(2): 217-227.
- [43] Xiong H, Lu Y, Wu Q, et al. Topological valley transport of terahertz phonon-polaritons in a LiNbO₃ chip[J]. ACS Photonics, 2021, 8(9): 2737-2745.
- [44] Dong J W, Chen X D, Zhu H Y, et al. Valley photonic crystals for control of spin and topology[J]. Nature Materials, 2017, 16(3): 298-302.
- [45] Zeng Y Q, Chattopadhyay U, Zhu B F, et al. Electrically pumped

- topological laser with valley edge modes[J]. *Nature*, 2020, 578 (7794): 246-250.
- [46] Kumar A, Gupta M, Pitchappa P, et al. Phototunable chip-scale topological photonics: 160 Gbps waveguide and demultiplexer for THz 6G communication[J]. *Nature Communications*, 2022, 13: 5404.
- [47] Sun S L, He Q, Xiao S Y, et al. Gradient-index meta-surfaces as a bridge linking propagating waves and surface waves[J]. *Nature Materials*, 2012, 11(5): 426-431.
- [48] Li Z Y, Kim M H, Wang C, et al. Controlling propagation and coupling of waveguide modes using phase-gradient metasurfaces[J]. *Nature Nanotechnology*, 2017, 12(7): 675-683.
- [49] Wang R D, Wu Q, Cai W, et al. Broadband on-chip terahertz asymmetric waveguiding via phase-gradient metasurface[J]. *ACS Photonics*, 2019, 6(7): 1774-1779.
- [50] Wang R D, Wu Q, Zhang Q, et al. Conversion from terahertz-guided waves to surface waves with metasurface[J]. *Optics Express*, 2018, 26(24): 31233-31243.
- [51] Hecht E. *Optics*[M]. 5th ed. London: Pearson Education, 2017.
- [52] Feuer T, Stoyanov N S, Ward D W, et al. Terahertz polaritons [J]. *Annual Review of Materials Research*, 2007, 37: 317-350.
- [53] Lu Y, Wu Q, Xiong H, et al. Observation of “frozen-phase” propagation of THz pulses in a dispersive optical system[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2021, 15(7): 2000591.
- [54] Born M, Oppenheimer R. Zur quantentheorie der molekeln[J]. *Annalen Der Physik*, 1927, 389(20): 457-484.
- [55] Nicoletti D, Cavalleri A. Nonlinear light-matter interaction at terahertz frequencies[J]. *Advances in Optics and Photonics*, 2016, 8(3): 401-464.
- [56] O'Brien K, Suchowski H, Rho J, et al. Predicting nonlinear properties of metamaterials from the linear response[J]. *Nature Materials*, 2015, 14(4): 379-383.

Terahertz Waves Transmission Modulation and Nonlinear Effects Based on Stimulated Phonon Polaritons

Xu Xitan^{1,2}, Huang Yibo^{1,2}, Lu Yao^{1,2}, Ma Ruobin^{1,2}, Wu Qiang^{1,2*}, Xu Jingjun^{1,2}

¹Key Laboratory of Weak-Light Nonlinear Photonics, Ministry of Education, TEDA Institute of Applied Physics and School of Physics, Nankai University, Tianjin 300457, China;

²Shenzhen Research Institute of Nankai University, Shenzhen 518083, Guangdong, China

Abstract

Significance Terahertz (THz) waves refer to electromagnetic waves within the frequency range of 0.1–10 THz, corresponding to wavelengths from 3 mm to 0.03 mm. THz techniques have found wide applications in fields such as materials science, non-destructive testing, biomedicine, security imaging, and next-generation communications, thus propelling the rapid development of THz photonics. However, whether in fundamental research or practical applications, effective manipulation of THz waves is essential to achieve functionalities such as frequency conversion, directional transmission, mode conversion, and phase control. Moreover, THz nonlinear effects are usually constrained by the electric field intensity and interaction distance.

For ionic crystals, incident THz waves couple with optical phonons in the material to form stimulated phonon polaritons, which introduces a novel mechanism for the interaction between THz waves and crystal materials. Stimulated phonon polaritons hold the potential to effectively control and dominate the interaction between THz waves and crystals, and offer a theoretical basis and technical means for studying the nonlinear effects of THz waves in crystals, thereby opening up new possibilities for the development of strong-field THz science and technology. Therefore, it is crucial and necessary to summarize research advances of stimulated phonon polaritons.

Progress This paper reviews the research progress of THz waves transmission modulation and nonlinear effects based on stimulated phonon polaritons. Firstly, after a brief introduction, the basic physical concepts and optical properties of phonon polaritons and stimulated phonon polaritons are introduced. With the influences of external input THz waves, stimulated phonon polaritons are excited, which are described by nonlinear Huang equations. In comparison with the spontaneous phonon polaritons described by classic Huang equations, the stimulated ones show mainly three differences: stronger intensity, more coherence, and delocalization. This is mathematically described by nonlinear Huang equations.

Secondly, the three excitation methods of stimulated phonon polaritons and corresponding diagrams of experimental setups (Fig. 2) are introduced. Femtosecond laser pulse pumping ferroelectric crystals such as lithium niobate (LN) is one of the most popular methods of the excitation of stimulated phonon polaritons. Tilted pulse fronts and lateral excitation can meet the velocity matching conditions, improve the excitation efficiency of the excited stimulated phonon polaritons, and modify their center frequency and pulse width. Then, the detection of stimulated phonon polaritons is described. Spatiotemporal super resolution quantitative imaging system (Fig. 3) can obtain the complete spatiotemporal evolution process of stimulated phonon polaritons by using pump-probe and phase contrast technique.

Thirdly, THz waves transmission modulation based on stimulated phonon polaritons is mainly achieved by three methods: topological valley transport (Fig. 4), asymmetric transmission (Fig. 6), and “frozen-phase” propagation (Fig. 8). In the topologically protected state, THz waves exhibit valley Hall effect and make smooth detours when encountered with wide angle (120°) bends, while the trivial ones are majorly scattered. In the subwavelength waveguide with phase gradient metasurfaces, THz waves are capable of asymmetric propagation with bandwidth up to 100 GHz by mode conversion. Under lateral excitation, the first order dispersion of

THz waves is eliminated, resulting in a phase-invariant propagation. These results lay the foundation for on-chip directional transmission, mode conversion and phase control of THz waves on chip, promoting the practical development of THz integrated devices.

Fourthly, in the ionic crystal, the delocalized stimulated phonon polaritons would lead to a giant enhancement of the optical nonlinearity at THz frequency by increasing the ionic polarization. Different from the heat-excited spontaneous phonon polaritons, the specialty of the stimulated phonon polaritons lies in the attendance of external coherent THz driving and the strong delocalization, which breaks the traditional light-matter interaction mechanism. Once THz waves are employed in the polar material, stimulated phonon polaritons are generated (Fig. 10). They transport the ionic states by electromagnetic fields in the whole material, indicating a strong delocalization of the stimulated phonon polaritons and ionic states. Furthermore, the external driving field makes the noncoherent ionic oscillations in spontaneous phonon polaritons become coherent, which is guaranteed to confirm the external driving THz field and behaves in a regular temporal phase evolution. Moreover, the spatial coherence of the stimulated phonon polaritons is protected by the temporal coherence and strong delocalization. Therefore, THz waves can directly excite the ionic polarization via stimulated phonon polaritons-mediated light-matter interaction. This results in a significant nonlinear light-matter interaction and induces a series of phenomena at the THz frequencies. Such high nonlinearities may prove valuable in practical applications such as on-chip integration of THz waves.

Conclusions and Prospects Stimulated phonon polaritons in ionic crystals represent not only a continuation of elementary excitations in condensed matter physics, but also a crucial branch in the future development of THz nonlinear physics. Stimulated phonon polaritons exceed Born-Oppenheimer approximation in physics, enabling a novel mechanism of interaction between light and matter. This mechanism turns phonon polaritons, originally affecting material spectra and heat capacity, into active participants in the interaction between light and matter. Through synergizing with strong-field THz radiation, stimulated phonon polaritons can modify the light-matter interaction process, enhancing nonlinear susceptibility and potentially further boosting THz nonlinear effects. Moreover, nonlinear Huang equations suggest that stimulated phonon polaritons can achieve comprehensive control over materials, extending beyond the modulation of optical properties in the high-frequency range (visible and near-infrared) of crystalline materials. This control encompasses properties such as optical-thermal, opto-mechanical, energy levels, and polarization, thus promising significant advancements and breakthroughs in the development of strong-field THz science and technology in the future.

Key words terahertz; stimulated phonon polaritons; transmission modulation; nonlinear effects