

中国激光

超快强激光泵浦强太赫兹源及其驱动的材料非平衡态研究进展

王康^{1,3}, 方依霏¹, 程曦², 张泽宇², 宋立伟¹, 杜鹃², 田野¹, 冷雨欣^{1,2*}

¹中国科学院上海光学精密机械研究所强场激光物理国家重点实验室, 上海 201800;

²中国科学院大学杭州高等研究院物理与光电工程学院, 浙江 杭州 310024;

³上海理工大学光电信息与计算机工程学院, 上海 200093

摘要 太赫兹源是太赫兹科学技术发展和相关应用研究的基础。超快激光为太赫兹的产生和探测提供了稳定、可靠的激发光源。超快激光泵浦各种激发介质可以产生太赫兹波, 激发介质主要有 4 类: 1) 固体介质, 如光电导天线、晶体等; 2) 气体介质, 如空气; 3) 液体介质, 如液态水、液态镓、液氮等; 4) 等离子体介质, 如钛薄膜、金属铜箔。太赫兹场强的进一步提高催生了人们对强场太赫兹与物质的相互作用以及太赫兹非线性光谱学的研究, 太赫兹不仅能作为探测物性的手段, 其发射光谱亦可以实现对材料中非平衡态载流子与晶格、自旋等有序度的强耦合。本文综述了超快激光激发数种不同类型介质产生太赫兹源的国内外研究发展历程, 包括其工作原理以及目前存在的问题, 总结了目前强场太赫兹波在物态调控方面的应用, 以及太赫兹时间分辨光谱在新型物态探测方面的应用, 最后展望了太赫兹源未来的发展趋势和应用前景。

关键词 激光技术; 超快激光; 强场太赫兹波; 物态调控

中图分类号 O441.4 文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL230891

1 引言

太赫兹 (Terahertz, 简称 THz, $1 \text{ THz} = 10^{12} \text{ Hz}$) 波段通常指频率范围为 $0.1 \sim 10 \text{ THz}$, 波长范围为 $0.03 \sim 3 \text{ mm}$, 介于微波与红外辐射之间的电磁波谱区域, 该频段处于宏观经典理论向微观量子理论以及电子学向光子学过渡的区域。太赫兹波在电子学领域被称为毫米波、亚毫米波, 在光学领域被称为远红外射线、T 射线。太赫兹波在信息通信^[1]、生物医学^[2-3]、无损检测^[4]以及基础物理研究^[5]等领域^[6-7]有着巨大的应用前景。但是在过去很长一段时期内, 由于缺乏有效的太赫兹产生和探测方法, 太赫兹波段一度成为电磁波谱的空白区域, 故而又被称为“太赫兹空隙”^[8]。随着激光技术尤其是超短脉冲激光技术的发展, 它驱动的多种非线性过程 (例如激光驱动的光电导天线^[9-10]、晶体材料光整流^[11]、激光驱动的气体^[12]、液体^[13]、固体^[14]等离子体效应, 激光差频^[15]等) 为太赫兹波的产生和探测提供了有力手段, 推动了太赫兹科学和技术的进步。

本文介绍了超快激光与非线性介质相互作用产生太赫兹辐射的工作原理, 总结了各种太赫兹辐射源及其应用研究进展, 并对太赫兹未来的发展趋势进行了

展望。

2 基于超短脉冲激光的太赫兹源

2.1 超短脉冲激光驱动光电导天线光整流

光电导天线 (PCA) 是常用的宽带太赫兹源之一, 它主要利用飞秒激光脉冲激励一个偏置光电导天线 (以 GaAs、Si、InP、ZnSe 等半导体为基底) 产生亚皮秒太赫兹脉冲。其产生机理是: 飞秒激光脉冲照射光电导天线表面, 如果飞秒激光的光子能量高于半导体的能带宽度, 就会产生光生载流子 (电子-空穴对), 若在两个电极之间加载一定的直流电压, 就会加速光生载流子的定向运动, 形成瞬态光电流, 从而以偶极辐射的方式辐射出电磁脉冲, 如图 1 所示。对于飞秒激光, 其产生的电磁脉冲宽度约为皮秒量级, 即对应着太赫兹辐射。太赫兹的脉宽和频谱取决于激发光脉宽和载流子寿命。

当入射激光的光强达到一定程度时, 光电导天线将出现空间电荷屏蔽饱和 (极化饱和), 从而限制了太赫兹波输出功率的进一步提高。因此, 传统的光电导天线辐射的太赫兹波较弱。要想得到更强的太赫兹波, 一个方法是增大天线两极间的孔径尺度 (天线表面

收稿日期: 2023-06-05; 修回日期: 2023-07-19; 录用日期: 2023-07-21; 网络首发日期: 2023-08-05

基金项目: 国家重点研发计划 (2022YFA1604400)

通信作者: *lengyuxin@siom.ac.cn

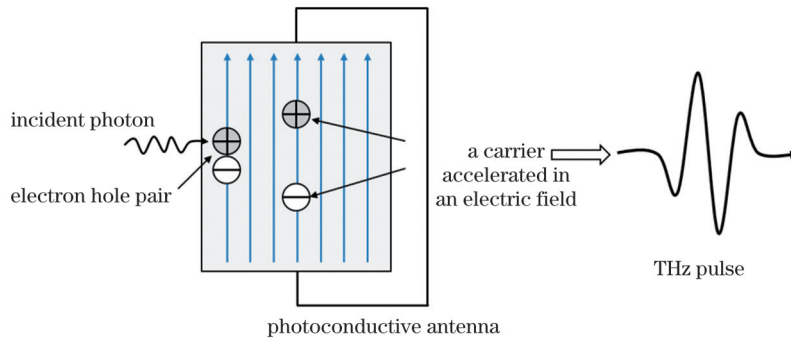


图 1 光电导天线产生太赫兹波

Fig. 1 The photoconductive antenna generating terahertz wave

两电极之间的最小距离), 即使用大孔径光电导天线 (LAPCAs)。1990 年, 美国哥伦比亚大学的 Darrow 等^[16]研究了大孔径光电导天线辐射太赫兹波的饱和特性。相对于小孔径光电导天线, 大孔径光电导天线在强激光情况下不容易饱和, 因此适合发射更高能量和更高效率的太赫兹波辐射。为提高天线产生太赫兹波的强度, 美国密歇根大学的 You 等^[17]采用 GaAs 作为大孔径光电导天线的基底材料, 产生了脉冲持续时间小于 500 fs、能量为 0.8 μJ 、对应的场强为 0.15 MV/cm 的太赫兹波, 其在 1.5 THz 处的光谱宽度为 10 dB。加拿大魁北克大学的 Ropagnol 等^[18]采用以 ZnSe 为基底的大孔径光电导天线产生了场强为 0.143 MV/cm 的太赫兹波; 接着, 他们用能量为 2.5 mJ、中心波长为 400 nm 的激光泵浦 ZnSe 天线, 产生了能量为 (8.3 \pm 0.2) μJ 、中心频率为 0.28 THz 的太赫兹波^[19]。

美国宾夕法尼亚大学的 Gao 等^[20]提出了利用激光诱导空气等离子体产生的太赫兹脉冲和剩余的激光脉冲 (未参与太赫兹脉冲的产生过程) 共同激发基于 Si-GaAs 的大孔径光电导天线的方案, 该方案完美地解决了光电导天线在高能量激光泵浦下出现的饱和效应和击穿问题。Gao 等最终获得了增强和展宽的太赫兹波信号, 并证明了叠加是太赫兹波增强和频谱展宽的主要机制。

大孔径光电导天线是第一个基于超快激光产生强太赫兹波的源。虽然增大天线之间的孔径可以进一步提高太赫兹能量, 但是中心频率却降低了, 而且太赫兹输出强度和转换效率还是很低 (转换效率约为 0.1%)。目前的主要限制因素是半导体衬底, 即需要选择具有高载流子迁移率以及能承受高偏压的材料作衬底。同时也需要合适的偏置电场, 因为产生太赫兹能量来源于偏置电场, 而不是激光脉冲能量。在大孔径光电导天线中, 虽然空间电荷的屏蔽效应对产生更高能量的太赫兹波的影响较小, 但是太赫兹波辐射场依然会受到饱和的制约, 即辐射波的近场屏蔽效应。

2.2 超短脉冲激光驱动晶体光整流

电光晶体是另一种常见的宽带太赫兹源。其工作过程可以理解为: 当宽带超快激光脉冲入射到非线性

晶体时, 其脉冲包络内部不同的频率成分在非线性晶体中产生一个低频振荡的时变电极化场, 进而向外辐射太赫兹波, 如图 2 所示。为了获得最高的能量转换效率, 飞秒激光与太赫兹波之间需要满足相位匹配条件, 即参与非线性过程的各个光波的频率与波矢都要守恒。具体表述为

$$v_1 - v_2 = v_{\text{THz}}, \quad k_1 - k_2 = k_{\text{THz}}, \quad (1)$$

式中: v_1 和 v_2 是飞秒激光中的不同频率成分; k_1 和 k_2 是对应的波矢; k_{THz} 是太赫兹波的波矢。由于太赫兹波相对于激光而言频率和波矢很小, 故而以上两式相除可以得到

$$v_{\text{THz}}^{\text{ph}} = v_{\text{pump}}^{\text{gr}}, \quad (2)$$

式中: $v_{\text{pump}}^{\text{gr}}$ 为泵浦光的群速度; $v_{\text{THz}}^{\text{ph}}$ 为太赫兹波的相速度。简单来说, 当光脉冲的群速度等于太赫兹波的相速度时, 光整流过程满足相位匹配条件。

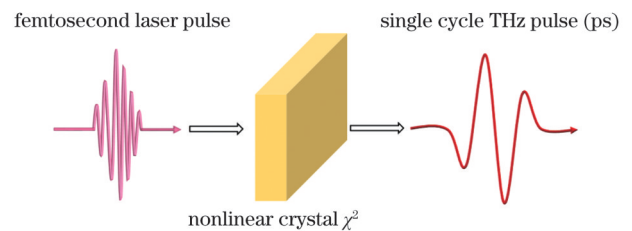


图 2 光学整流产生太赫兹波

Fig. 2 Optical rectification generating terahertz wave

光整流所使用的晶体主要有 ZnTe^[21]、LiNbO₃^[22] 和 GaP^[23] 以及 DAST、DSTMS、OH1 等有机晶体^[24]。ZnTe 和 GaP 是宽禁带半导体, 被激光照射时会通过双光子或多光子吸收产生很高的载流子浓度, 导致晶体很容易被破坏, 限制了太赫兹辐射能量的提高。LiNbO₃ 晶体以其高非线性系数、高损伤阈值、高激光透射率等特点被广泛应用于强场太赫兹的产生。泵浦激光与太赫兹波在 LiNbO₃ 晶体中的折射率差别较大, 需要采用特殊的相位匹配方式, 以获得更高的转换效率。DAST^[25]、DSTMS^[26] 等有机晶体在红外和太赫兹波段的折射率接近, 二阶非线性系数较大, 是优异的太赫兹光源材料; 其限制因素是材料的破坏阈值相对较低, 大尺寸生长工艺尚不完备。

为了解决 LiNbO₃ 晶体中泵浦光和太赫兹波的相位失配问题,2002 年,匈牙利佩奇大学的 Hebling 等^[27]提出了倾斜波前技术(TPFP)。尽管泵浦光的群速度很大,但是其倾斜的波前速度为群速度波前倾斜角 γ 的余弦值,如图 3 所示。倾斜波前技术需要满足的速度匹配条件为

$$v_{\text{THz}}^{\text{ph}} = v_{\text{pump}}^{\text{gr}} \cos \gamma, \quad (3)$$

式中: γ 为群速度波前倾斜角。通过改变不同的波前倾斜角 γ 可以获得不同的波前速度。

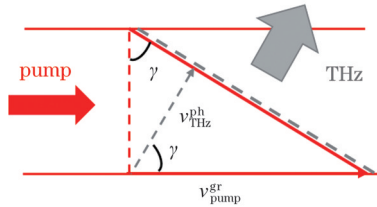


图 3 倾斜波前技术

Fig. 3 Titled-pulse-front pump technique

倾斜波前技术利用光栅、棱镜等角色散元件实现泵浦光波前的倾斜,从而改变泵浦光在晶体中的传播速度,使泵浦光和产生的太赫兹波更容易满足相位匹配条件。同时,该方法降低了激光的光强,更有利于保护晶体不受损伤,可以获得更高效的太赫兹波输出。

基于倾斜波前技术,科研人员开展了一系列 LiNbO₃ 晶体产生高效太赫兹波的研究。德国马克斯-普朗克研究所的 Stepanov 等^[28]利用能量为 500 μJ 、脉宽为 150 fs、中心波长为 780 nm 的激光泵浦室温下的 LiNbO₃ 晶体,产生了能量为 240 nJ 的太赫兹波;当泵浦能量为 300 μJ 时,转换效率最高为 0.05%。美国麻省理工学院的 Yeh 等^[29]利用中心波长为 800 nm、能量为 20 mJ、重复频率为 10 Hz 的激光泵浦 LiNbO₃ 晶体,获得了单脉冲能量为 10 μJ 、峰值电场为 0.25 MV/cm、能量转换效率为 0.06% 的太赫兹波。俄罗斯科学院光谱研究所的 Stepanov 等^[30]利用能量为 28 mJ、脉宽为 50 fs、中心波长为 800 nm 的激光泵浦 LiNbO₃ 晶体,获得了能量为 30 μJ 、转换效率超过 0.1% 的太赫兹波。

通过掺杂 MgO 等可以弥补 LiNbO₃ 晶体存在的光折变效应和低损伤阈值等不足。德国马克斯-普朗克研究所的 Stepanov 等^[31]利用能量为 2.3 μJ 、重复频率为 200 kHz 的激光脉冲泵浦 MgO 掺杂浓度为 2% 的 LiNbO₃ 晶体,获得了能量为 30 pJ 的太赫兹波,能量转换效率为 0.0013%。匈牙利佩奇大学的 Hebling 等^[32]在同等条件下泵浦 MgO 掺杂浓度为 0.6% 的 LiNbO₃ 晶体,获得了能量为 400 pJ 的太赫兹波,其量子转换效率为 3.4%。这说明高掺杂浓度的 MgO 并没有明显提高太赫兹能量。日本京都大学的 Hirori 等^[33]利用中心波长为 780 nm、能量为 4 mJ 的激光泵浦 MgO 掺杂浓

度为 1.3% 的 LiNbO₃ 晶体,通过优化太赫兹波的光束质量获得了场强为 1.2 MV/cm、能量转换效率为 0.1% 的太赫兹波。LiNbO₃ 晶体在室温下对太赫兹波有显著的吸收(1 THz 时,吸收系数为 17 cm^{-1}),这将限制太赫兹波的转换效率和输出能量。为了降低晶体对太赫兹波的线性吸收,可以将晶体置于液氮冷却的环境中^[34]。此外,泵浦激光的波长和脉宽对太赫兹波的产生效率也有一定影响^[35]。

美国麻省理工学院的 Huang 等^[36]将 LiNbO₃ 晶体冷却到 77 K,然后用中心波长为 1030 nm、能量为 1.2 mJ、脉宽为 680 fs 的激光泵浦 LiNbO₃ 晶体,获得了能量为 13.5 μJ 的太赫兹波,能量转换效率超过了 3.8%。2014 年,匈牙利强场太赫兹研究中心的 Fülöp 等^[37]利用中心波长为 1030 nm、脉宽为 785 fs 的强激光泵浦 LiNbO₃ 晶体,获得了单脉冲能量为 0.4 mJ 的太赫兹波。2023 年,北京航空航天大学的 Wu 等^[38]利用能量为 214 mJ、波长为 800 nm 的激光泵浦冷却到 91 K 的 LiNbO₃ 晶体,产生了单脉冲能量为 1.4 mJ、场强为 6.3 MV/cm、能量转换效率约为 0.7% 的太赫兹波。最近,该团队联合中国科学院上海光学精密机械研究所^[38]采用超强超短脉冲激光泵浦 LiNbO₃ 晶体,获得了单脉冲能量为 13.9 mJ 的高能太赫兹波输出(能量转换效率为 1.2%),这是目前倾斜波前技术产生太赫兹波的最高能量纪录。

倾斜波前技术很好地解决了 LiNbO₃ 晶体相位失配的问题,但因为需要将泵浦光波前倾斜,会导致产生的太赫兹波光束质量较差。美国马里兰大学的 Jang 等^[39]利用能量为 4 J、脉宽为 25 fs、功率为 150 TW 的钛宝石激光器直接泵浦大孔径 LiNbO₃ 薄片,产生了能量为 0.19 mJ、中心频率为 1 THz、频谱宽度为 4 THz 的单周期太赫兹波。2021 年,俄罗斯国家研究中心的 Nazarov 等^[40]利用强激光直接泵浦 LiNbO₃ 薄片产生了频谱宽度超过了 6 THz 的太赫兹波。

在高平均功率强场太赫兹源方面,加拿大的 Guiramand 等^[41]用中心波长为 1024 nm、重复频率为 25 kHz、脉冲能量为 400 μJ 的激光泵浦掺杂 MgO 的 LiNbO₃ 晶体,同时用阶梯镜实现相位匹配,在室温下得到了平均功率为 53 mW、场强为 0.31 MV/cm 的太赫兹波,能量转换效率达到了 1%。

以上研究主要是产生窄带单周期太赫兹波。对于多周期太赫兹波,除了采用啁啾延迟技术^[42](将泵浦脉冲加上额外啁啾,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,再将合束入射到 LiNbO₃ 晶体中,便可产生多周期太赫兹脉冲)产生外,还可以通过准相位匹配的周期极化(PPLN)晶体来产生。2019 年,德国汉堡大学的 Jolly 等^[43]引入高阶色散调整谱相位,利用能量为 1.2 J、脉宽为 260 ps、中心波长为 800 nm 的激光入射 PPLN 晶体,产生了能量为 0.6 mJ、中心频率为 0.361 THz 的多周期太赫兹波。2020 年,美国马

里兰大学的 Jang 等^[44]利用能量为 2 J、脉宽为 25 fs 的 TW 激光器泵浦大孔径 LiNbO₃ 薄片,同时利用干涉得到了多周期太赫兹波,其中心频率为 15 THz,最大能量为 0.71 mJ,能量转换效率约为 0.04%。

有机晶体 DAST、DSTMS、OH1 等具有较高的非线性系数和太赫兹透射率。相比于 LiNbO₃ 等无机晶体,有机晶体的太赫兹辐射源具有转换效率高、带宽大以及可满足共线相位匹配条件等优势。2011 年,瑞士保罗谢尔研究所的 Vicario 等^[45]利用能量为 2.5 mJ、脉宽为 70 fs 的中红外激光直接泵浦 DAST 晶体,获得了中心频率为 2.1 THz、峰值电场强度为 1 MV/cm、磁场强度为 0.5 T 的太赫兹波,并且载波包络相位稳定,能量转换效率高达 2%。2012 年,瑞士保罗谢尔研究所的 Ruchert 等^[46]利用能量为 660 μJ、中心波长为 1350 nm 的激光泵浦 OH1 晶体,实现了电场强度为 440 kV/cm、中心频率为 1.5 THz 的太赫兹波,能量转换效率为 1.5%。接着,他们利用能量为 2 mJ、脉宽为 70 fs、中心波长为 1500 nm 的激光泵浦 DSTMS 晶体,产生了中心频率为 0.15~5.5 THz、场强为 1.5 MV/cm 的太赫兹波^[47]。在有机晶体中,通过光整流效应产生宽带太赫兹波主要存在两个问题:一是有机晶体尺寸较小且不均匀,激光损伤阈值低,无法利用高能量大光斑进行泵

浦;二是高能光学参量放大器(OPA)输出的激光脉冲能量不稳定并且光束轮廓不均匀。为了解决晶体尺寸较小的问题,可以通过拼接现有晶体来增大作用面积。Vicario 等^[48]将多个小块的具有相同取向的 DSTMS 晶体粘贴在一起,利用基于钛宝石激光的 OPA 系统输出的能量为 3 mJ、脉宽为 65 fs、中心波长为 1500 nm 的激光分别泵浦拼接后的大尺寸 DSTMS 晶体(PCS-DSTMS)以及小块 DSTMS 晶体。结果显示:PCS-DSTMS 产生的太赫兹波可以进行相干叠加。最终,PCS-DSTMS 晶体产生了单脉冲能量为 0.68 mJ、峰值场强为 36 MV/cm 的太赫兹波。OPA 系统输出激光光束的质量较差,存在热点现象,因此并不适合用于泵浦有机晶体产生强太赫兹波。鉴于此,Vicario 等^[49]改用 Cr:Mg₂SiO₄ 的 CPA 系统产生的中心波长为 1250 nm、最大能量为 30 mJ 的高能激光泵浦 PCS-DSTMS,实现了 0.1~5 THz 范围内 0.9 mJ 的太赫兹波输出,能量转换效率达到了 3%,聚焦后的峰值电场高达 42 MV/cm,如图 4 所示。随后,他们分别泵浦 DAST、DSTMS、OH1 晶体产生太赫兹波,这三种晶体产生的太赫兹波的频谱范围分别为 0.1~10 THz、0.1~4 THz、0.1~3 THz,峰值场强分别为 6.2、18、9.9 MV/cm,其中 DSTMS 晶体中太赫兹光斑的尺寸小于 300 μm^[50]。

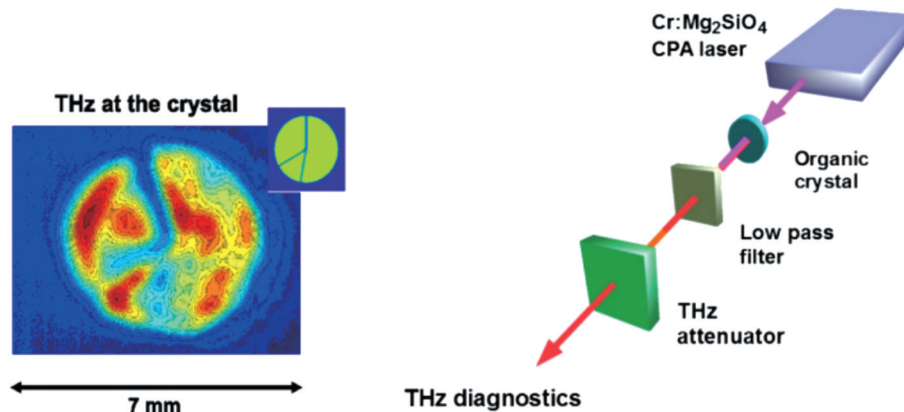


图 4 PCS-DSTMS 晶体产生太赫兹波^[49]

Fig.4 PCS-DSTMS crystals generating terahertz waves^[49]

要想提高太赫兹波的场强,除了可以直接缩小太赫兹波光斑的尺寸外^[51],还可以先对泵浦光进行整形(以提高太赫兹光束质量)而后对太赫兹波进行三维紧聚焦。瑞士国家实验室的 Shalaby 等^[52]利用反射式望远镜系统对飞秒泵浦光波前进行整形,使其接近平面波分别入射到 DSTMS 和 OH1 晶体上,然后将产生的太赫兹波聚焦到衍射极限(以提高太赫兹场强),最终在 DSTMS 晶体上获得了电场强度为 83 MV/cm、磁场强度为 27.7 T、能量为 109 μJ 的太赫兹波,在 OH1 晶体上获得了电场强度为 62 MV/cm、磁场强度为 20.7 T、能量为 76 μJ 的太赫兹波。

室温下晶体对太赫兹波存在一定的吸收,可通过冷却有机晶体来减弱其对太赫兹波的吸收,进而提高

太赫兹波的产生效率。日本大阪大学的 Takemoto 等^[53]将 DAST 晶体从室温分别冷却到 15 K 和 46 K,结果发现 1.1 THz 和 4.5 THz 两条吸收谱线随温度降低向高频移动,但输出太赫兹波的幅度并没有发生明显的变化。这一情况不同于 LiNbO₃ 晶体的温度依赖性^[54]。瑞士国家实验室的 Stepanov 等^[55]将 OH1 从室温冷却到 10 K,太赫兹波的产生效率也只提高了 10%。可见,在有机晶体冷却实验中,输出太赫兹波的能量并没有随温度降低而有效提升。在国内,青岛大学的 Wang 等^[56]利用生长的 DSTMS 晶体产生了场强为 2.5 MV/cm、频谱范围为 0.1~5 THz、中心频率为 3 THz 的太赫兹波。之后,他们研究了 1~4 THz 频率范围内的 DSTMS 晶体的吸收系数和折射率,以及不

同晶体厚度下输出太赫兹波的吸收频谱图^[57]。中国科学院理化技术研究所的 Li 等^[58]利用生长的 OH1 晶体产生了 0.25~3 THz 的太赫兹波,得到的能量是同等条件下 ZnTe 晶体的两倍。

与 DAST 和 DSTMS 晶体相比,OH1 晶体在 1 THz 频率附近的吸收系数较小(在 0.7~1.0 THz 范围内,吸收系数小于 2 cm^{-1}),这使得 OH1 在低频太赫兹波的产生上具有一定优势,可以弥补 DAST 和 DSTMS 晶体在该频率范围内输出能量低的不足(其在 1 THz 左右的吸收系数大于 230 cm^{-1}),但是 OH1 晶体存在非线性系数较低、激光损伤阈值较低的问题,因此无法产生更强的低频太赫兹波。

相比于无机晶体的太赫兹辐射源,有机晶体的太赫兹辐射源具有转换效率高、带宽大、相位匹配条件简单、易于实现等优势。但是,大尺寸、高品质的有机晶体的生长仍十分困难。目前可以优化的手段主要有两种:一是优化泵浦光的质量,比如波前调制或者时空啁啾等;二是通过拼接增大有机晶体的尺寸,增大有效作用面积。因此,研制新型的吸收系数更小、非线性系数更大、损伤阈值更高的有机晶体是接下来的研究目标。

2.3 光学差频

光学差频(DFG)是产生高功率和宽带可调谐太赫兹源最重要的方法之一。其基本原理是将两束频率相近的泵浦光同时入射到非线性晶体中,基于晶体的二阶非线性效应产生频率在太赫兹频段的电磁波。通过调节两束泵浦光的频率差可以实现太赫兹波频率的连续调谐。

2010 年,德国康斯坦茨大学的 Junginger 等^[59]利用双波长 OPA 输出波长为 1180 nm 和 1280 nm 的两束红外光在 GaSe 晶体中差频,实现了太赫兹波输出,其峰值场强为 12 MV/cm ,中心频率为 22 THz,频谱范围

为 15~30 THz。中国科学院上海光学精密机械研究所的 Bai 等^[60]采用双波长 OPA 输出的两束强激光泵浦 GaSe 晶体,产生了频谱覆盖 15~34 THz、峰值场强为 280 MV/cm 的中红外脉冲,并用其激发氙气和氦气电离产生了超连续谱。

虽然 GaSe 晶体等无机晶体的吸收系数较小,而且具有很大的非线性系数和较宽的透光范围(620~20000 nm),但其支持的频率集中在 10 THz 以上,无法获得低于 10 THz 的强场太赫兹波,而 DAST、DSTMS 和 OH1 等有机晶体则可以实现低频段可调谐太赫兹波输出。2004 年,日本东北大学的 Taniuchi 等^[61]利用双波长 KTP-OPO 输出的波长在 1300~1450 nm 范围内的激光泵浦 DAST 晶体,实现了 2~20 THz 范围内的可调谐太赫兹波输出。在 11.6 THz 时,太赫兹波能量为 82 nJ;在 19 THz 时,太赫兹波能量为 110 nJ。天津大学的 Liu 等^[62]利用双波长 KTP-OPO 在国产 DSTMS 晶体中差频实现了 0.88~19.27 THz 范围内的可调谐太赫兹波输出,其最大能量可达到 85.3 nJ,光子转换效率为 0.36%。同时,他们分析了 DSTMS 晶体厚度对差频的影响。接着,他们在 OH1 晶体中差频,实现了 0.02~20 THz 范围内可调谐太赫兹输出,太赫兹波的最大能量可达到 507 nJ,光子转换效率为 2.9%^[63]。

2016 年,德国马克斯-普朗克研究所的 Liu 等^[64]利用两路 OPA 产生的两束具有线性啁啾的频率梳在 DSTMS 晶体中差频,实现了可调谐太赫兹波输出,调谐范围为 4~18 THz,线宽小于 1 THz,远红外脉冲能量为 $1.9 \mu\text{J}$,如图 5 所示。

在所有光学方法中,差频方法是唯一一种可以在一定条件下产生的太赫兹功率随着泵浦激光功率和非线性晶体长度的增加而增大的方法,因此该方法成为了使转换效率最有可能接近量子转换效率极限的方

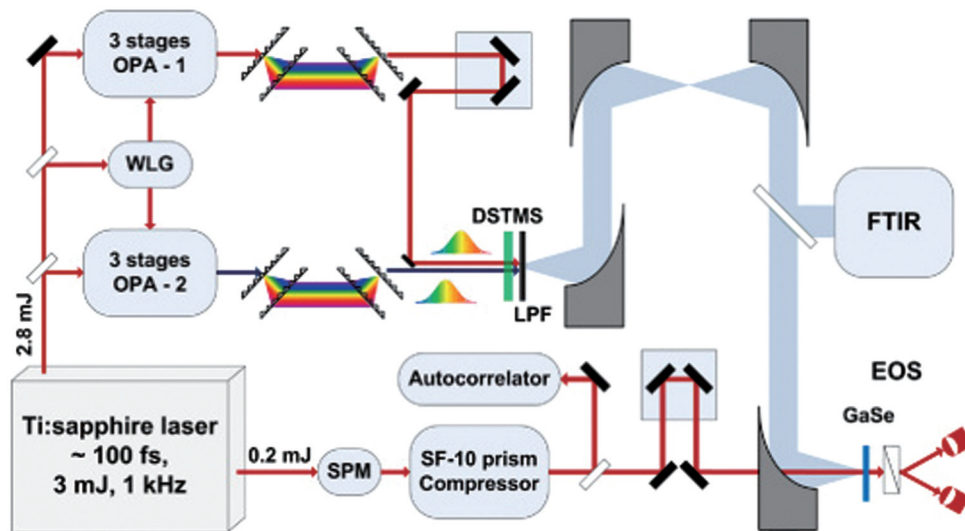


图 5 DSTMS 晶体差频产生太赫兹波^[64]

Fig. 5 Difference frequency of DSTMS crystals generating terahertz wave^[64]

法。GaSe 等无机晶体输出的太赫兹脉冲的频率较高,峰值场强也高,但可调谐范围已超出传统的太赫兹波段;而 DSTMS 等有机晶体虽然差频后产生的太赫兹波可以覆盖整个太赫兹频段,但产生的太赫兹波的能量较低,场强也较低,而且有机晶体在强激光泵浦下容易发生光整流效应,难以通过差频获得可调谐的强场太赫兹波。

2.4 超短脉冲激光驱动气体成丝

空气等离子体产生太赫兹脉冲的基本原理是:飞秒激光脉冲聚焦在空气中,使空气电离形成等离子体,并通过低密度的空气等离子体向外辐射太赫兹波^[12]。其理论解释主要有质动力模型、切连科夫模型、四波混频、瞬态光电流模型,具体的物理机制目前仍存在争议。

单色场激发空气成丝产生太赫兹波的能量很弱。2000 年,美国宾夕法尼亚大学的 Cook 等^[65]首次将中心波长为 800 nm、脉宽为 65 fs、能量为 150 μJ 的激光脉冲以及它的倍频光(400 nm)聚焦在空气中的相同位置,获得了单周期的太赫兹波,其场强达到了 2 kV/cm,频谱范围为 0.1~5 THz。该方案被称为双色场方案。德国非线性光学和短期光谱研究院的 Bartel 等^[66]研究了双色场产生的太赫兹波电场振幅与激光强度的关系,提出利用更短的激光脉冲泵浦空气,可以产生场强达到 400 kV/cm、频谱在 0.3~7 THz 范围的太赫兹波。

进一步的研究表明,稀有气体中太赫兹波的产生效率更高。美国伦斯勒理工学院的 Chen 等^[67]比较了双色激光与不同气体介质(氦气、氖气、氩气、氙气和氮气)作用产生太赫兹波的效率,结果显示:双色激光与氙气作用时,太赫兹波的产生效率可达到 1.17%。随后,洛斯阿拉莫斯实验室的 Rodriguez 等^[68]研究了泵浦能量、气体种类和气压对太赫兹波输出能量的影响,实验发现:在高气压下,在氙气中产生的太赫兹波的能量高于在其他气体中产生的;在低气压下,得到了与文献^[67]类似的结论。首都师范大学的 Zhao 等^[69]给出了太赫兹波能量与输入脉冲能量、气体种类、气体压力和泵浦波长之间的关系。他们的研究表明,由相对较长波长的激光泵浦较重的气体产生的等离子体更可能获得更高能量的太赫兹波。

随着激光功率的提高,可以采用更强的泵浦能量来提高太赫兹输出能量。美国马里兰大学的 Oh 研究团队^[70]利用中心波长为 800 nm、能量为 15 mJ、脉宽为 30 fs 的双色场激光脉冲泵浦空气成丝,获得了单脉冲能量为 1.44 μJ 、平均功率为 12 MW、场强为 8 MV/cm 的太赫兹波,频谱宽度大于 20 THz,能量转换效率为 0.01%。之后,为了避免球面透镜聚焦引起的等离子体散焦和太赫兹波饱和问题,他们将能量为 50 mJ 的飞秒激光改用柱透镜聚焦在空气中,获得了能量为 30 μJ 、场强为 21 MV/cm、能量转换效率约为 0.07% 的

太赫兹波^[71]。

可以通过改变泵浦光的波长来提高太赫兹波的产生率。加拿大国立科学研究院的 Clerici 等^[72]研究了泵浦波长从 800 nm 到 2020 nm 的双色场对太赫兹波能量的影响,结果表明:1800 nm 双色场产生的太赫兹波能量是 800 nm 双色场的 30 倍,峰值场强可达到 4.4 MV/cm。之后,美国得克萨斯农工大学的 Fedorov 等^[73]和中国科学院物理研究所的 Wang 等^[74]的数值模拟表明,当双色场基频光的波长为 3000~4000 nm 时,太赫兹波的产生能量和转换效率都较高。希腊电子结构与激光研究所的 Koulouklidis 等^[75]用实验验证了更长的波长可以产生更强的太赫兹波这一结论,他们利用中心波长为 3900 nm、能量为 30 mJ、脉宽为 95 fs 的中红外激光泵浦空气成丝。基频 3900 nm 和倍频 1950 nm 共同聚焦在空气中可以产生等离子体细丝,从而向外辐射太赫兹波,如图 6 所示。他们获得了能量为 185 μJ 、转换效率高达 2.36%、场强达到 100 MV/cm 的单周期太赫兹波,这是目前气体中产生太赫兹波的最高纪录。

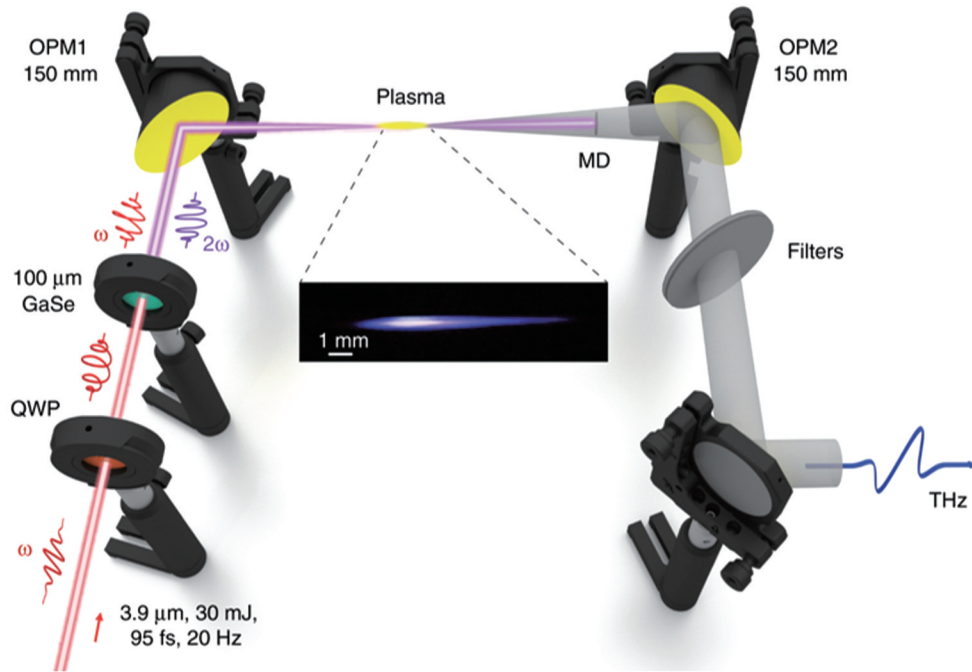
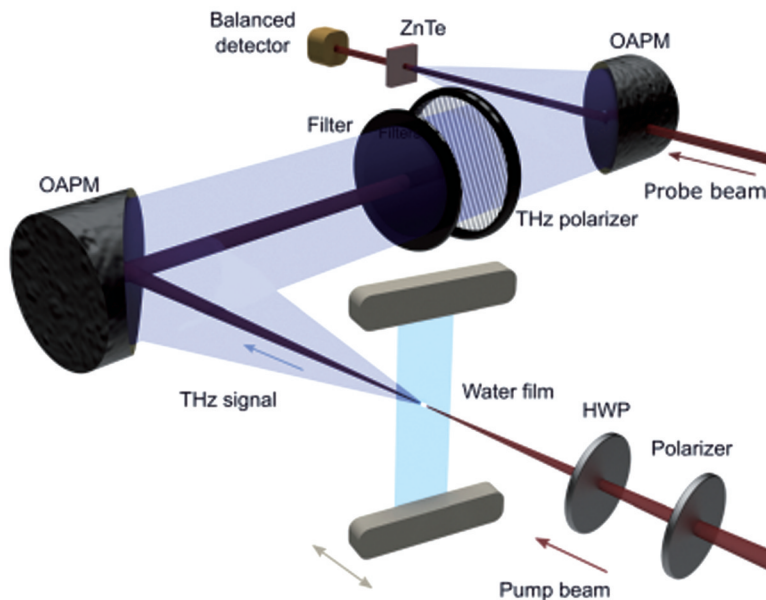
与前面所述光电导天线和电光晶体等固体太赫兹辐射源不同,空气是各向同性介质,不存在声子共振、色散和太赫兹或者光束反射引起的回声信号,而且是持续可再生的。但由于等离子体的散焦效应以及等离子体对太赫兹波的吸收等,当激光强度达到一定值时,输出的太赫兹波不再随着激光强度的增加而增强,会出现饱和效应,导致太赫兹波的转换效率较低,相当一部分(>50%)的泵浦能量未被充分利用。

2.5 激光驱动液体等离子体

液态物质,比如液态水,是一种强极性液体,在太赫兹波段内有很强的吸收性(在 1 THz 处,吸收系数为 220 cm^{-1})^[76],因此一直被认为不可能作为太赫兹波的源。当强激光与液体介质作用时,电离液体介质产生等离子体,辐射频率位于太赫兹波段的电磁波。

2017 年,美国罗切斯特大学的 Jin 等^[13]首次报道了超短激光脉冲激发液态水膜也能产生太赫兹波。他们利用两根平行的细金属丝引导液态水,水在重力驱动下由于表面张力形成自由流动的水膜,水膜厚度约为 177 μm ,如图 7 所示。在相同的条件下,液体产生的太赫兹波相比于空气中产生的太赫兹波大幅增强,但水膜产生的太赫兹波的频谱更窄,因为液态水对太赫兹波的高频成分具有较强的吸收。

随后,首都师范大学的张亮亮等^[77]报道了激光激发电水柱产生强太赫兹波的研究。水柱产生太赫兹波的场强为 0.15 MV/cm,分别是水膜和空气等离子体中产生的太赫兹波的 20 倍和 100 倍,与双色场激发空气等离子体产生的太赫兹波相当。相比于水膜、空气等离子体,水柱产生的太赫兹波对应的频谱最窄,空气等

图 6 双色场激光成丝产生太赫兹波^[75]Fig. 6 Two-color field laser filaments generating terahertz waves^[75]图 7 液态水膜产生太赫兹波^[13]Fig. 7 Liquid water film generating terahertz wave^[13]

离子体产生的太赫兹波的频谱最宽。这是由空气和水中形成的等离子体的密度分布和长度差异引起的。北京理工大学的Feng等^[78]比较了不同直径水柱产生的太赫兹波强度,其中直径为0.2 mm的水柱产生的太赫兹波振幅最大,对应的最佳光脉宽为400 fs。

为了在液体介质中得到宽带高能的太赫兹波,印度塔塔基础研究所的Dey等^[79]采用28 mJ强激光分别激发乙醇、甲醇、丙酮、二氯乙烷、去离子水和二硫化碳等液体介质。结果显示:在丙酮介质中产生了约76 μJ的太赫兹波,该值是同等条件下双色场激光成丝产生

的太赫兹能量的20倍;在丙酮、乙醇中产生的太赫兹波带宽也达到了100 THz;在丙酮中获得的太赫兹波场强为2 MV/cm。

相比于极性液体对太赫兹波的强吸收,液氮作为常见的非极性液体,在太赫兹波段内表现出了较低的吸收性(在1 THz处的吸收系数为 0.8 cm^{-1})。上海科技大学的Balakin等^[80]首次证明了在单色场和双色场泵浦下液氮能够产生太赫兹波,其能量与空气等离子体中产生的太赫兹波的能量相当。最近,美国罗切斯特大学的Cao等^[81]利用单色激光脉冲激发液态镓,获

得了比激发液态水更强的太赫兹波,信号比液态水中产生的高 1.7 倍,而且具有更大的带宽。

通过水等液体介质产生太赫兹波辐射源是一种十分新颖的方法。水具有比气体介质更高的三阶非线性极化率、更低的电离阈值等,利用液态水膜产生的太赫兹辐射脉冲的能量转换效率高于双色场等离子体。基于这类新的激发介质——水,人们有望在强太赫兹辐射脉冲源方面实现突破,但目前还没有确切的理论来解释在水等液体介质中产生太赫兹波的机理,仍有待进一步探索。

2.6 超短脉冲激光驱动固体等离子体

基于固体靶的太赫兹源不存在上述诸多限制因素。随着激光能量持续增强,激光固体靶产生太赫兹的优势逐渐显现出来。当超强激光与固体靶相互作用时,激光脉冲前沿部分会先在靶表面产生薄层等离子体,激光主脉冲与这一薄层等离子体相互作用,在靶的表面和内部产生超热电子;当超热电子运动到靶背面时,由真空中的渡越辐射理论可知,其在靶后会产生较强的太赫兹波,如图 8 所示。

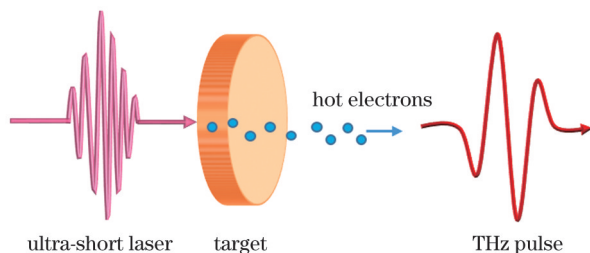


图 8 激光固体靶产生太赫兹波

Fig. 8 Laser-solid target generating terahertz wave

2013 年,德国耶拿大学的 Gopal 等^[14]用能量为 600 mJ 的激光泵浦钛薄膜靶,在其后表面产生了能量为 46 μJ 、频谱范围为 0.1~30 THz 的太赫兹辐射。他们将太赫兹辐射的产生归因于靶背鞘层离子加速引起的瞬态电流变化。同年,他们将泵浦激光能量提高到 1 J,使钛薄膜靶后表面辐射的太赫兹波能量提高到了 700 μJ ^[82]。2019 年,上海交通大学的 Liao 等^[83]利用 60 J 的超强皮秒激光脉冲作用在金属铜箔靶上,在靶背面获得了约 50 mJ 的超强太赫兹波。这一工作将太赫兹波的能量纪录提高了近两个数量级。

2020 年,中国科学院上海光学精密机械研究所的 Zeng 等^[84]基于飞秒激光驱动的金属丝波导螺旋波荡器机制^[85],利用 3 mJ 飞秒激光脉冲与直径为 50 μm 的钨丝作用,产生了 25 μJ 的太赫兹波能量,能量转换效率约 1%。

激光与固体靶相互作用产生太赫兹波的特点是频谱较宽,单脉冲能量高(毫焦量级),但能量转换效率普遍较低(<0.1%)。在激光与固体靶的相互作用过程中,固体靶的形状、材料、密度、厚度和结构等因素都将影响结果甚至是相互作用机制。因此,不同结构的靶

也会影响太赫兹波的产生效率和背后的物理过程。激光固体靶是目前产生太赫兹波能量最高的方法,未来有很大的发展空间。

2.7 各种太赫兹源的比较

尽管超快激光驱动产生强场太赫兹的方法众多,但其基本原理还是基于瞬态电流的辐射。比如,光电导天线中是瞬态光电流,光学整流中是诱导的极化电流,空气或液体等离子体中是空气/液体界面的非对称性产生的净电流,激光等离子体中是随时间变化的表面电流。瞬态电流密度的大小决定了产生的太赫兹波的强弱,不同的介质中瞬态电流存在的时间不同。介质对瞬态电流辐射的响应,以及材料对太赫兹波的吸收特性,共同决定了最终产生的瞬态电场及频谱分布。

不同的太赫兹源有其各自的应用场景,同时又各有优缺点:基于光电导天线的太赫兹源具有实验装置简单、稳定性高的优点,但天线存在损伤阈值低、电磁噪声较高、太赫兹场强低的缺点,而且低光通量下存在饱和效应;基于晶体光整流的太赫兹源具有高的稳定性和转换效率,但晶体存在声子吸收和损伤阈值等限制,难以进一步提高泵浦光的能量;基于气体等离子体的太赫兹源具有无损伤阈值、高场强、超宽频谱等优点,但是转换效率低,能量也较低,而且在高能量泵浦下存在饱和效应;基于光差频的太赫兹源具有高峰值场强、宽调谐、窄线宽等优点,但其主要是在高频段(>10 THz)可调谐;液体介质具有无损伤阈值、宽带的优点,但是输出的太赫兹能量较弱;激光固体靶具有高能量和高功率的优点,但是稳定性差,需要高功率(TW 到 PW)激光器。其中的很多太赫兹源可以产生电场强度超过 1 MV/cm 的太赫兹波,研究人员基于这些源开展了一系列超快时间尺度内强场太赫兹波与物质相互作用的研究,如太赫兹场诱导的晶格畸变、分子排列、共振和非共振控制,以及瞬态带隙动力学等等^[86]。

3 太赫兹辐射源的应用

3.1 强场太赫兹辐射源的应用

随着超快激光驱动的太赫兹波输出能量的逐年提升,太赫兹波的脉冲能量从最初的 pJ 量级,提高到了现今的 μJ 和 mJ 量级。脉冲能量的持续增加也带来了太赫兹波峰值电场的逐步增强,峰值场强从最开始的 kV/cm 量级提高到了现在的 MV/cm 量级,对物质的调控也从弱场过渡到了强场,与物质的相互作用也相应地从线性检测阶段发展到了非线性调控阶段^[87]。

德国马克斯-普朗克研究所的 Kampfath 等^[86]分析了强场太赫兹波共振和非共振调控材料中晶格和电子的演化过程。用于物态调控的太赫兹脉冲宽度一般在 1 ps 左右(取决于太赫兹源的特性),具有稳定的载波包络相位,其电场强度和磁场强度分别高达 1 MV/cm 和 0.33 T。当这样的强太赫兹脉冲入射到

物质上时,它将与物质的多个自由度相互作用,引起晶格振动、自旋进动、电子加速等物理过程。这些过程需要借助泵浦-探测时间分辨技术来分析,即利用一束强太赫兹脉冲作为泵浦光与样品发生作用,同时利用另

一束弱的光脉冲作为探测光来研究样品性质(电磁学、光学特性)的变化,通过改变两束光之间的相对时间延迟来记录材料在太赫兹脉冲诱导下的超快动力学过程,如图 9 所示。

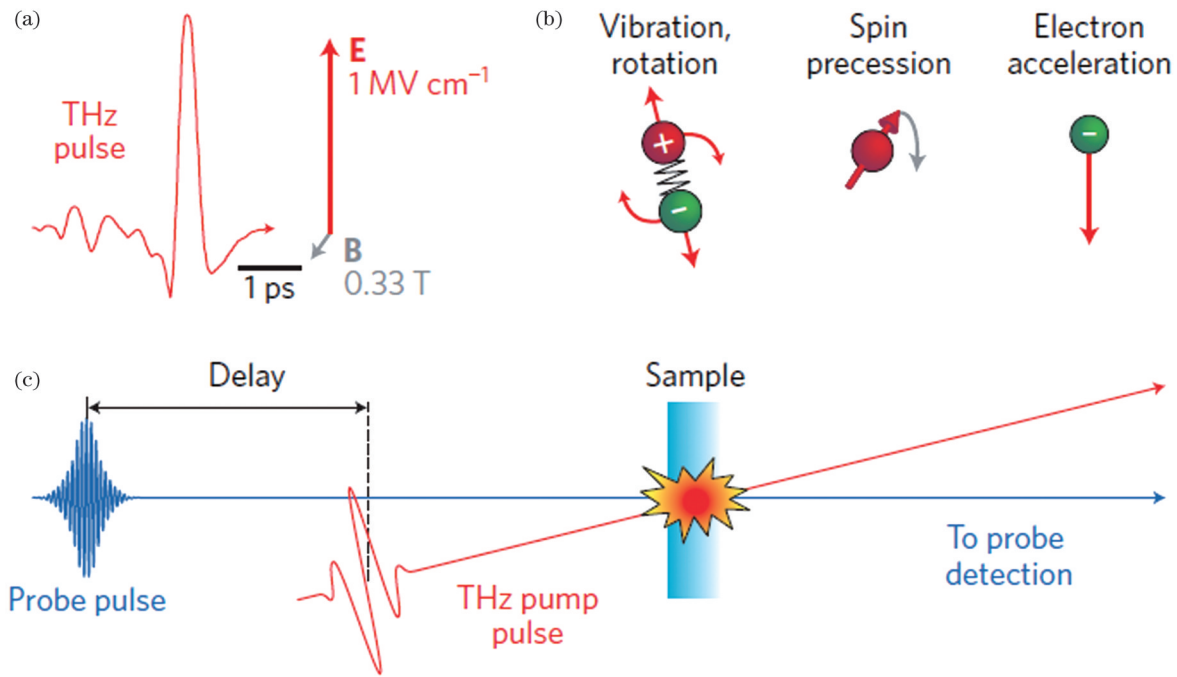


图 9 强场太赫兹物质调控机制^[86]。(a)强场太赫兹脉冲;(b)振动旋转、自旋进动、电子加速;(c)强太赫兹泵浦-光学探测时间分辨光谱技术示意图

Fig. 9 Mechanism of matter controlling of using high-field terahertz wave^[86]. (a) High-field terahertz pulse; (b) vibration rotation, spin precession, and electron acceleration; (c) scheme diagram of time-resolved spectroscopy of high-field THz pump-optical probe

目前,在研究强场太赫兹物态调控过程中,太赫兹诱导的光学二次谐波效应和克尔效应是常用的研究手段。利用强太赫兹电场诱导光学二次谐波产生(SHG),目前在中心反演对称性材料NiO^[88]和Si^[89]、ZnTe晶体^[90]中均可观察到。德国马尔堡大学的Schubert等^[91]将强场太赫兹波入射到GaSe晶体上,不仅观察到了二次谐波,还观察到了22次谐波。

克尔效应是一种光学三阶非线性效应,即:在电场作用下,介质沿平行和垂直于电场方向偏振的折射率之差与光电场的平方成正比,从而出现感应双折射现象。光学频段的克尔效应很常见,但太赫兹频段的克尔效应却很少有人关注。德国汉堡大学的Zalden等^[92]首次利用低频单周期太赫兹波诱导了液态水的双折射信号,并认为平行于永久偶极矩方向的分子极化率较垂直于永久偶极矩方向的小。北京大学的Zhao等^[93]却认为液态水的双折射信号来自氢键运动而不是电子运动。德国汉堡大学的Hoffmann等利用强太赫兹波在其他液体中也观察到了克尔效应^[94-96]。克尔效应不仅发生在液体介质中,在常见窗口和衬底材料等^[97-98]固体介质中也能观察到。

美国国家同步加速器光源的Shen等^[99]在ZnTe晶体中观察到了交叉相位调制现象。瑞士国家实验室的

Vicario等^[100]在薄GaP晶体中也观察到了明显的交叉相位调制现象,他们发现:当强太赫兹脉冲和探测脉冲同时经过GaP晶体时,探测脉冲的光谱会被展宽。他们认为光谱展宽是太赫兹脉冲诱导的克尔效应和普克尔效应共同引起的。

除此之外,利用强太赫兹电场还可以诱导出物质的相变过程。美国波士顿大学的Liu等^[101]利用超材料增强后的太赫兹脉冲(从0.3 MV/cm增强到4 MV/cm)激发基于金属开口谐振环处的VO₂薄膜的绝缘-金属相变过程,实现了VO₂薄膜上皮秒量级的非线性传输响应。美国麻省理工学院的Li等^[102]利用强太赫兹电场激发,动态诱导出了量子顺电材料钛酸锶SrTiO₃中隐藏的铁电相。

另外,强电场必然伴随着强磁场。利用太赫兹强磁场选择性地操控磁性材料中的电子自旋,可以研究材料中的自旋动力学过程。德国马克斯-普朗克研究所的Kampfrath等^[103]采用强场太赫兹的磁场分量(45 mT)激发45 μm厚的NiO晶体,利用磁光法拉第旋转效应观测了其自旋动力学过程。德国雷根斯堡大学的Baierl等^[104]用磁场强度高达0.4 T的强场太赫兹驱动反铁磁NiO中的非线性自旋响应。德国马克斯-普朗克研究所的Balos等^[105]利用强场太赫兹磁场诱导

出分子液体的法拉第效应。

3.2 时间分辨太赫兹光谱的应用

基于超短脉冲激光产生的太赫兹波通常具有超宽带、高相干性等特点,并且其脉冲频谱范围能从 0.1 THz 覆盖到 50 THz 以上。因此,基于超短脉冲的太赫兹时域光谱技术至少在以下两个方面具有显著优势:

1) 相干性。时域太赫兹光谱能提供除了振幅变化之外的相位信息,因此可以完整地获得待测样品介电函数的响应,其中振幅变化对应于介电函数的实部,相位变化对应于介电函数的虚部。2013年,美国哥伦比亚大学的 Jnawali 等^[106]发现石墨烯中费米面附近的狄拉克费米子的介电函数实部与虚部的关系符合德鲁德模型。

2) 共振特性。由于超短脉冲产生的太赫兹波的频谱范围覆盖了绝大部分凝聚态物质的元激发共振能量,因此太赫兹时域光谱可以直接探测声子、等离激元、极化子、极化激元、磁振子等元激发与对应物相的直接联系。2011年,日本东京大学的 Iida 等^[107]发现了太赫兹的磁场脉冲能够激发反铁磁材料沿着倾角轴的磁振子,如图 10 所示。随后,上海大学的 Zhou 等^[108]还发现这种磁振子模式出射的太赫兹波为圆偏振。而上海大学的 Li 等^[109]利用两束太赫兹波激发具有周期性结构的金属薄膜实现了对其中共振频率约为 0.72 THz 的表面等离激元的相干控制。

此外,时间分辨太赫兹时域光谱技术能够通过飞秒激光诱导瞬态物态来研究时域太赫兹光谱所能探测到的相干与共振光谱信息随时间的演化。例如,美国哥伦比亚大学的 Jnawali 等^[106]发现石墨烯在光诱导下产生的载流子响应依然是类 Dirac-Fermion,这也为解释石墨烯中的载流子动力学提供了重要的基础。如图 10 所示,2021年,杭州高等研究院的 Zhang 等^[110]利用时间分辨太赫兹光谱对硒化锑/氧化锡异质结中的热载流子提取过程进行了深入研究,结果发现载流子在不同硒化锑与氧化锡中的复电导率色散关系具有显著差异,从而证明了载流子在 1 ps 时间尺度内被提取到氧化锡层中。这一类通过复电导率色散关系来验证超快载流子输运过程的方法还被应用于 MoS₂与石墨烯异质结^[111]、PtSe₂与石墨烯异质结^[112]、WSe₂与石墨烯异质结^[113]等二维材料的电荷转移体系中。在共振激发的时间分辨太赫兹光谱方面,研究激发态与元激发的关系也能从动力学方面证明不同元激发之间的耦合过程。例如,2022年,上海理工大学的 Jin 等^[114]发现在光诱导下 MAPbI₃钙钛矿中的声子模式与载流子浓度具有明显的依赖关系,并将其归因于大极化子的耦合与形成过程。此类研究表明,太赫兹时域光谱与时间分辨太赫兹时域光谱是一种非常有效的、无接触式、低微扰探测半导体非平衡态动力学和载流子输运的有力手段之一。

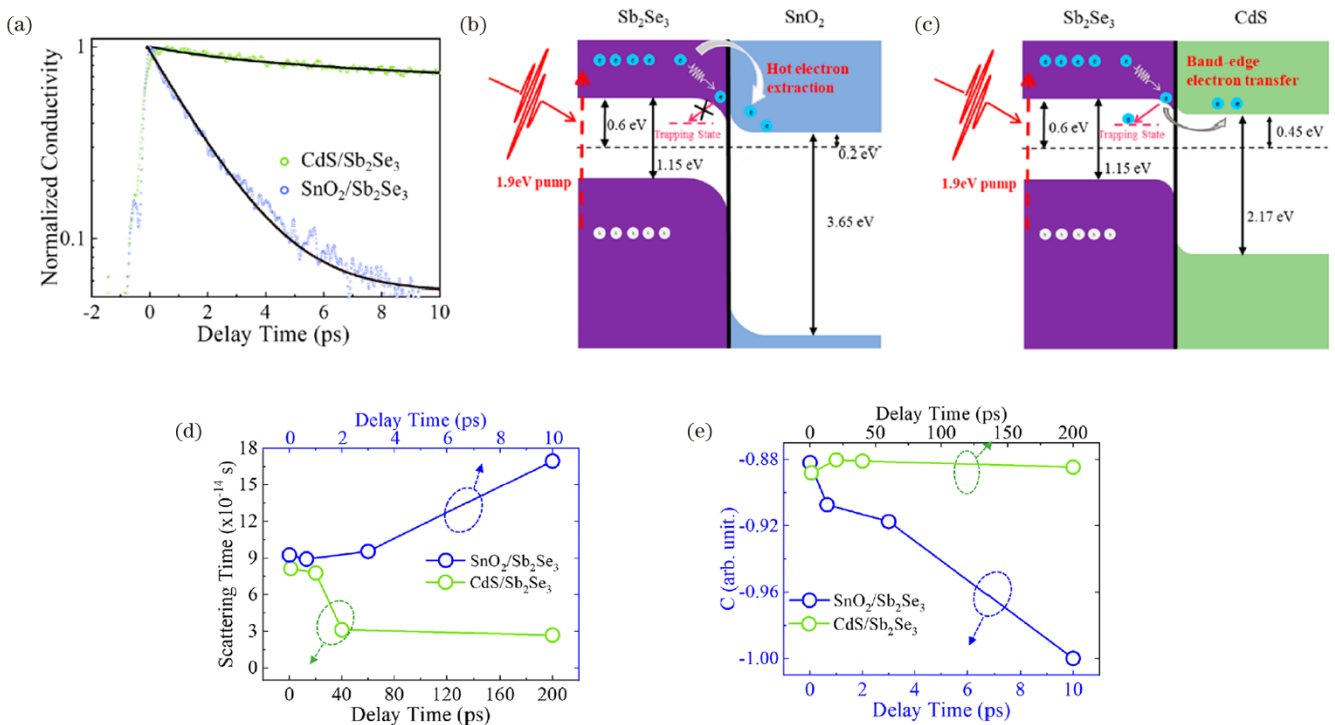


图 10 SnO₂/Sb₂Se₃和 CdS/Sb₂Se₃异质结中热载流子的提取过程^[110]。(a)具有 CdS 和 SnO₂缓冲层的 Sb₂Se₃的时间依赖光致太赫兹电导率;(b)(c)SnO₂/Sb₂Se₃和 CdS/Sb₂Se₃的能带图;(d)SnO₂/Sb₂Se₃和 CdS/Sb₂Se₃的超快时间依赖的散射时间;(e)SnO₂/Sb₂Se₃和 CdS/Sb₂Se₃的衰减时间依赖的 C 参数

Fig. 10 Hot carrier extraction process in SnO₂/Sb₂Se₃ and CdS/Sb₂Se₃ heterojunctions^[110]. (a) Time-dependent photoinduced terahertz conductivity of Sb₂Se₃ with CdS and SnO₂ buffer layers; (b)(c) band diagrams of SnO₂/Sb₂Se₃ and CdS/Sb₂Se₃; (d) ultrafast time-dependent scattering time of SnO₂/Sb₂Se₃ and CdS/Sb₂Se₃; (e) decay time-dependent C parameter of SnO₂/Sb₂Se₃ and CdS/Sb₂Se₃

3.3 非平衡态光电流诱导太赫兹发射的应用

对于现代信息技术来说,半导体及其异质结被应用在各种光电器件中的主要机理源于其导通与禁阻的可调谐性。而半导体从导通到禁阻这一过程一般来说是非平衡态过程,针对光诱导半导体非平衡态物性进行研究对于光电器件设计与研究来说具有重要的原理性指导意义。飞秒激光激发对称性受到破坏的半导体后能够产生非零的净光生电流,而这种瞬态电流不仅可以作为新型的太赫兹波源,还可以用来探究新型光电材料和器件中载流子、晶格、自旋与谷自由度等的复杂耦合过程^[115]。

光生瞬态电流的产生过程一般来说是一种二阶非线性过程。对于特定的材料来说,要产生非零的亚皮

秒尺度光电流一般还需要宇称、时间或者空间反演对称性的破缺。早在 1990 年,美国哥伦比亚大学的张希成等^[116]就发现了硅、GaAs、GaSe 等材料表面经飞秒激光辐照后会辐射出太赫兹波,并将此归因于半导体表面的缺陷能级与半导体形成的表面耗尽场加速光生载流子形成的耗尽电流辐射。耗尽电流尽管广泛存在于半导体辐射太赫兹波的机制之中,但还是可以通过不同的激发与检测手段将不同类型的光电流进行区分的。2016 年,德国马克斯-普朗克研究所的 Braun 等^[117]在三维拓扑绝缘体 Bi₂Se₃ 中发现耗尽电流与位移电流辐射的太赫兹波的电场偏振方向与频谱宽度都有很大不同,并认为光激发 Bi₂Se₃ 中的表面态可能对宽达 30 THz 的太赫兹波辐射具有重要贡献,如图 11 所示。

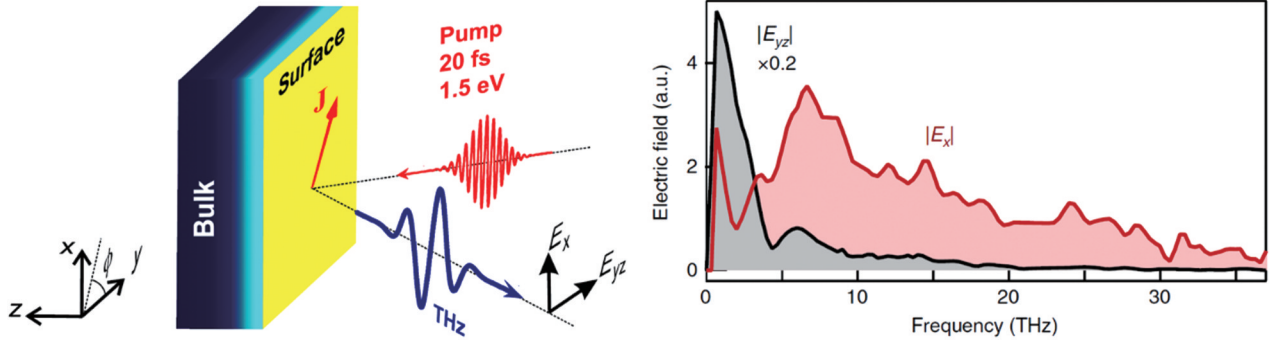


图 11 飞秒激光诱导拓扑绝缘体表面辐射不同偏振方向的宽带太赫兹波示意图^[117],其中 E_x 为位移电流辐射频谱,而 E_{yz} 为耗尽电流辐射太赫兹的频谱

Fig. 11 Schematic diagram of femtosecond laser-induced topological insulator surface radiating broadband terahertz waves of different polarization directions^[117], where E_x is the displacement current radiation spectrum, and E_{yz} is the depletion current radiation spectrum

耗尽电流不仅可以出现在块状半导体中。最近 10 年来,得益于大面积二维材料制备方法研究的如火如荼发展,化学气相沉积(CVD)生长的单层或少层过渡金属硫族化合物(TMDs)中也被证明存在着瞬态耗尽电流辐射太赫兹波的过程。我国研究人员^[118-120]在低维 MoS₂、WSe₂、MoSe₂ 等 TMDs 中发现了飞秒激光激发耗尽电流和位移电流共同作用下辐射出的太赫

兹。对耗尽场进行调控可以显著增强其辐射的太赫兹波,如图 12 所示。中国科学院上海光学精密机械研究所的宋凡臣等^[121]发现,将二维 WSe₂ 与三维硅形成混合维度的异质结,不仅可以保留 WSe₂ 在激子峰激发下的左右旋产生不同光电流的手性特征,还可以对 WSe₂ 与硅中耗尽场辐射的太赫兹波有 8~10 倍的放大效果,为主动设计与制备异质结耗尽场从而辐射增强的

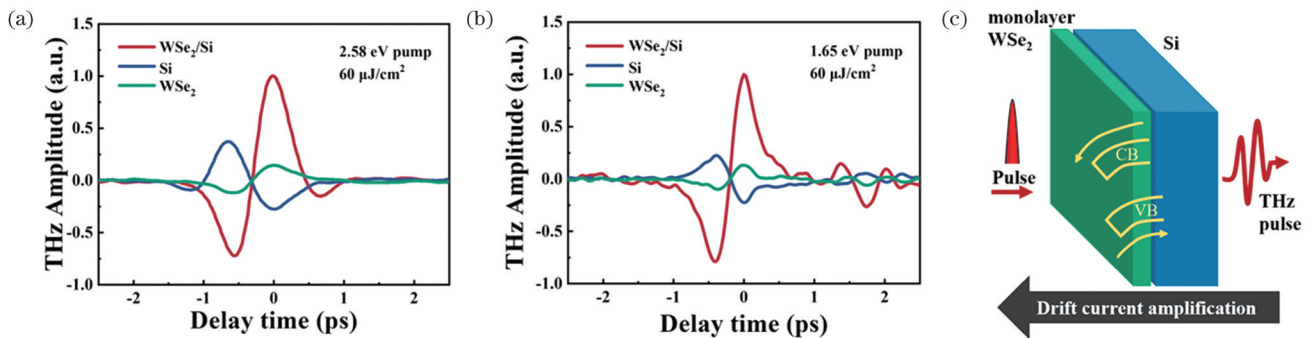


图 12 WSe₂/Si 异质结中位移电流放大引起的太赫兹辐射增强^[121]。(a)~(b)不同光子能量激发下 WSe₂/Si、硅与 WSe₂ 的太赫兹发射时域光谱;(c)耗尽场加速电荷转移的示意图

Fig. 12 Terahertz radiation enhancement induced by drift current amplification in WSe₂/Si heterojunctions^[121]. (a)~(b) Time-domain spectroscopy of terahertz pulses generated from WSe₂/Si, Si, and monolayer WSe₂ upon excitation with different pump photon energies; (c) schematic illustration of the depletion field-accelerated charge transfer

太赫兹波提供了新的研究思路。

在位移电流辐射太赫兹波方面,上海大学的 Suo 等^[122]和国防科技大学的 Tong 等^[123]分别在 GaTe 与 CrSiTe₃ 的块体中发现了主要由位移电流诱导的太赫兹辐射。与耗尽电流相比,位移电流具有明显的激发光偏振依赖特性,并且具有更快的传输速度,未来可以作为方便控制的无热耗散的光电转换途径之一。

耗尽电流与位移电流通常需要材料本身的空间或者时间反演对称性破缺,而在双极性半导体中还可能由电子与空穴迁移率不同而导致的瞬态电流,这种电流被称为瞬态丹倍电流。有机-无机杂化铅基钙钛矿(HOIP)是一种典型的双极性半导体。2018年,美国国家加速器实验室的 Guzelturk 等^[124]观察到了 MAPbI₃ 薄膜在飞秒激光激发后产生的太赫

兹辐射,并证明了太赫兹发射场是由垂直于薄膜表面的超快瞬态丹倍电流产生的。然而,要实现通过太赫兹波辐射来研究非平衡态光电流与材料中晶格、自旋等自由度的强耦合过程,还缺少必要的理论基础。2023年,中国科学院上海光学精密机械研究所的岳星宇等^[125]首先建立了非平衡态光电流与自发极化亚晶格非谐耦合的理论模型,并利用 FAPbI₃ 本身的不同声子模式能够被导带劈裂区分开来这一特性,成功实时观察了其中大极化子在数皮秒时间内的形成过程。由图 13(b)可知:当飞秒激光激发导带 1 底部时,只有 I-Pb-I 对应的晶格振动能够调制光生丹倍电流的频率;而当飞秒激光激发导带 2 底部时,FA 分子的转动模式 P2(≈0.4 THz)开始调制丹倍电流的辐射频率,证明了钙钛矿中极化子的实时形成过程。

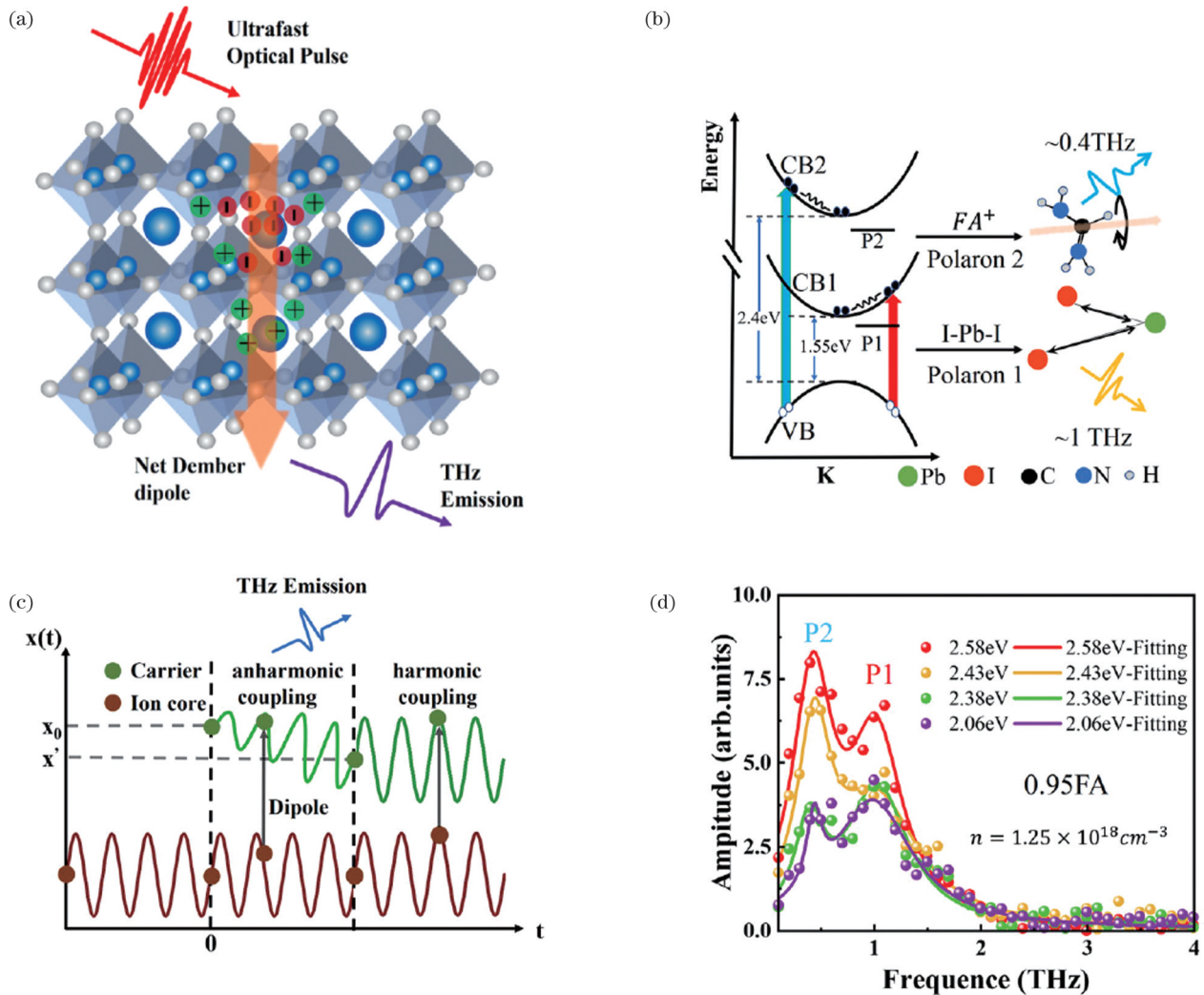


图 13 FAPbI₃ 中极化子的太赫兹辐射^[125]。(a)飞秒激光诱导 FAPbI₃ 中的太赫兹辐射示意图;(b)非平衡态光电流与晶格非谐耦合过程辐射对应频率的太赫兹波(P1、P2 为辐射的极化子模式);(c)FAPbI₃ 中的子带结构;(d)波长依赖的耦合辐射强度变化
Fig. 13 Polaron terahertz radiation in FAPbI₃^[125]. (a) Terahertz radiation induced by femtosecond laser in FAPbI₃; (b) the process of non-equilibrium photocurrent coupling with the lattice anharmonic vibration to radiate terahertz waves at corresponding frequencies (P1 and P2 are the emission modes of the polaron); (c) the sub-band structure of FAPbI₃; (d) wavelength-dependent change in coupled radiation intensity

非平衡态光电流除了可以反映材料中固有的拓扑、对称性、电荷转移过程等变化之外,它的太赫兹发射还能作为一种有效的瞬态物性探测手段。例如,2021年,美国艾奥瓦州立大学的Luo等^[126]在中心对称的Dirac材料 $ZrTe_5$ 中,利用激光诱导相干声子驱动打破其反演对称性,产生了具有无耗散特性的、各向异性的太赫兹非线性电流。光诱导非平衡态声子会使其能带中的Dirac点向Weyl点转换的过程(Lifshitz相变过程)表现为圆偏振依赖的瞬态光电流的出现。该实验首次通过圆偏振光生伏打效应成功探测到这一非平衡物态的形成。

4 总结与展望

近年来,基于超快激光驱动的各种太赫兹辐射源的研究得到了飞速发展。本文分别以固体、气体、液体、等离子体这4种不同的激发介质为出发点,介绍了各种基于超短脉冲激光的强场太赫兹源,综述了这些太赫兹源的研究进展以及目前存在的问题。这些太赫兹源的开发仍然是未来强场太赫兹前沿研究和应用技术应用的热点。

晶体光整流可以产生转换效率为1%~3%的宽带太赫兹输出,虽然目前还未能实现高能量、高转换效率、超宽频带的太赫兹波输出,但该方案以其稳定、高效、易操作等优点,成为当前实验室最常用的太赫兹波产生方法之一,已被广泛应用于大多数强场太赫兹波物质调控研究,实现电子的加速与操控、物质的超快相变、太赫兹非线性光谱等。要想进一步将材料激发到更高的强非线性区域,实现对物质状态更为复杂的调控,发现更多的新物理和新现象,还需要开发更高能量、更高场强、更高光束质量的太赫兹辐射源。

尽管太赫兹辐射源发展迅速,但是探索强场太赫兹源的过程中仍然存在着一系列科学难题和技术挑战亟待解决,比如晶体损伤问题,转换效率偏低,太赫兹主要位于低频段,固体和气体等离子体产生太赫兹波的物理机制仍存在争议。宽带可调谐、高场强、高能量、高稳定性、低成本、结构紧凑的太赫兹源是未来的发展趋势;利用强场太赫兹可以激发物质的低激发态,改变物质的光学、电学以及磁性性质,从而实现人类对物质世界的精准操控。优化现有各种激发介质的太赫兹源并开发出新的太赫兹辐射源,对新型量子材料等(典型的材料包括铁磁材料、反铁磁性材料、石墨烯、拓扑电子材料等)进行超快调控,对于未来太赫兹的发展具有重要意义。

参 考 文 献

- [1] Kleine-Ostmann T, Nagatsuma T. A review on terahertz communications research[J]. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 2011, 32(2): 143-171.
- [2] Pickwell E, Wallace V P. Biomedical applications of terahertz technology[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2006, 39(17): R301-R310.
- [3] Siegel P H. Terahertz technology in biology and medicine[J]. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, 2004, 52(10): 2438-2447.
- [4] Pawar A Y, Sonawane D D, Erande K B, et al. Terahertz technology and its applications[J]. *Drug Invention Today*, 2013, 5(2): 157-163.
- [5] Jepsen P U, Cooke D G, Koch M. Terahertz spectroscopy and imaging—modern techniques and applications[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2011, 5(1): 124-166.
- [6] Mittleman D M. Perspective: terahertz science and technology[J]. *Journal of Applied Physics*, 2017, 122(23): 230901.
- [7] Tonouchi M. Cutting-edge terahertz technology[J]. *Nature Photonics*, 2007, 1(2): 97-105.
- [8] Sirtori C. Bridge for the terahertz gap[J]. *Nature*, 2002, 417(6885): 132-133.
- [9] Auston D H, Cheung K P, Smith P R. Picosecond photoconducting hertzian dipoles[J]. *Applied Physics Letters*, 1984, 45(3): 284-286.
- [10] Smith P R, Auston D H, Nuss M C. Subpicosecond photoconducting dipole antennas[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1988, 24(2): 255-260.
- [11] 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.
- [12] Hamster H, Sullivan A, Gordon S, et al. Subpicosecond, electromagnetic pulses from intense laser-plasma interaction[J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(17): 2725-2728.
- [13] Jin Q, Williams K, Yiwen E, et al. Observation of broadband terahertz wave generation from liquid water[J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 111(7): 071103.
- [14] Gopal A, Herzer S, Schmidt A, et al. Observation of gigawatt-class THz pulses from a compact laser-driven particle accelerator [J]. *Physical Review Letters*, 2013, 111(7): 074802.
- [15] Sell A, Leitenstorfer A, Huber R. Phase-locked generation and field-resolved detection of widely tunable terahertz pulses with amplitudes exceeding 100 MV/cm[J]. *Optics Letters*, 2008, 33(23): 2767-2769.
- [16] Darrow J T, Hu B B, Zhang X C, et al. Subpicosecond electromagnetic pulses from large-aperture photoconducting antennas[J]. *Optics Letters*, 1990, 15(6): 323-325.
- [17] You D, Dykaar D R, Jones R R, et al. Generation of high-power sub-single-cycle 500-fs electromagnetic pulses[J]. *Optics Letters*, 1993, 18(4): 290-292.
- [18] Ropagnol X, Blanchard F, Ozaki T, et al. Intense terahertz generation at low frequencies using an interdigitated ZnSe large aperture photoconductive antenna[J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 103(16): 161108.
- [19] Ropagnol X, Khorasaninejad M, Raeiszadeh M, et al. Intense THz Pulses with large ponderomotive potential generated from large aperture photoconductive antennas[J]. *Optics Express*, 2016, 24(11): 11299-11311.
- [20] Gao Y H, Yang C E, Chang Y, et al. Terahertz-radiation-enhanced broadband terahertz generation from large aperture photoconductive antenna[J]. *Applied Physics B*, 2012, 109(1): 133-136.
- [21] Blanchard F, Razzari L, Bandulet H C, et al. Generation of 1.5 μ J single-cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal[J]. *Optics Express*, 2007, 15(20): 13212-13220.
- [22] Yang K H, Richards P L, Shen Y R. Generation of far-infrared radiation by picosecond light pulses in $LiNbO_3$ [J]. *Applied Physics Letters*, 1971, 19(9): 320-323.
- [23] Aoki K, Savolainen J, Havenith M. Broadband terahertz pulse generation by optical rectification in GaP crystals[J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 110(20): 201103.
- [24] Sinko A, Ozheredov I, Rudneva E, et al. Perspective on terahertz

- applications of molecular crystals[J]. *Electronics*, 2022, 11(17): 2731.
- [25] Yang Z, Jazbinsek M, Ruiz B, et al. Molecular engineering of stilbazolium derivatives for second-order nonlinear optics[J]. *Chemistry of Materials*, 2007, 19(14): 3512-3518.
- [26] Mutter L, Brunner F D, Yang Z, et al. Linear and nonlinear optical properties of the organic crystal DSTMS[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2007, 24(9): 2556-2561.
- [27] Hebling J, Almasi G, Kozma I, et al. Velocity matching by pulse front tilting for large area THz-pulse generation[J]. *Optics Express*, 2002, 10(21): 1161-1166.
- [28] 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.
- [29] 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): 1121-1123.
- [30] 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.
- [31] 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.
- [32] 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.
- [33] 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.
- [34] Pálfalvi L, Hebling J, Kuhl J, et al. Temperature dependence of the absorption and refraction of Mg-doped congruent and stoichiometric LiNbO₃ in the THz range[J]. *Journal of Applied Physics*, 2005, 97(12): 123505.
- [35] Fülöp J A, Pálfalvi L, Almási G, et al. Design of high-energy terahertz sources based on optical rectification: erratum[J]. *Optics Express*, 2011, 19(23): 22950.
- [36] Huang S W, Granados E, Huang W R, et al. High conversion efficiency, high energy terahertz pulses by optical rectification in cryogenically cooled lithium niobate[J]. *Optics Letters*, 2013, 38(5): 796-798.
- [37] 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.
- [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): e2208947.
- [39] Jang D, Kang C, Lee S K, et al. Scalable terahertz generation by large-area optical rectification at 80 TW laser power[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(22): 5634-5637.
- [40] Nazarov M M, Shcheglov P A, Teplyakov V V, et al. Broadband terahertz generation by optical rectification of ultrashort multiterawatt laser pulses near the beam breakup threshold[J]. *Optics Letters*, 2021, 46(23): 5866-5869.
- [41] Guiramand L, Nneck 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.
- [42] 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.
- [43] 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: 2591.
- [44] 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.
- [45] Vicario C, Ruchert C, Hauri C P. High field broadband THz generation in organic materials[J]. *Journal of Modern Optics*, 2015, 62(18): 1480-1485.
- [46] Ruchert C, Vicario C, Hauri C P. Scaling submillimeter single-cycle transients toward megavolts per centimeter field strength via optical rectification in the organic crystal OH1[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(5): 899-901.
- [47] Ruchert C, Vicario C, Hauri C P. Spatiotemporal focusing dynamics of intense supercontinuum THz pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2013, 110(12): 123902.
- [48] Vicario C, Monoszlai B, Hauri C P. GV/m single-cycle terahertz fields from a laser-driven large-size partitioned organic crystal[J]. *Physical Review Letters*, 2014, 112(21): 213901.
- [49] Vicario C, Ovchinnikov A V, Ashitkov S I, et al. Generation of 0.9-mJ THz pulses in DSTMS pumped by a Cr:Mg₂SiO₄ laser[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(23): 6632-6635.
- [50] Vicario C, Jazbinsek M, Ovchinnikov A V, et al. High efficiency THz generation in DSTMS, DAST and OH1 pumped by Cr:forsterite laser[J]. *Optics Express*, 2015, 23(4): 4573-4580.
- [51] Chefonov O V, Ovchinnikov A V, Agratn M B, et al. Terahertz beam spot size measurements by a CCD camera[J]. *Optics Letters*, 2019, 44(17): 4099-4102.
- [52] Shalaby M, Hauri C P. Demonstration of a low-frequency three-dimensional terahertz bullet with extreme brightness[J]. *Nature Communications*, 2015, 6: 5976.
- [53] Takemoto Y, Takeya K, Kawayama I, et al. Temperature dependence of terahertz wave generation from DAST crystal illuminated by 1.56 μ m fiber laser[J]. *Terahertz Science and Technology*, 2011, 4(2): 42-45.
- [54] Vicario C, Monoszlai B, Lombosi C, et al. Pump pulse width and temperature effects in lithium niobate for efficient THz generation [J]. *Optics Letters*, 2013, 38(24): 5373-5376.
- [55] Stepanov A G, Ruchert C, Levallois J, et al. Generation of broadband THz pulses in organic crystal OH1 at room temperature and 10 K[J]. *Optical Materials Express*, 2014, 4(4): 870-875.
- [56] Wang T H, Cao L F, Zhong D G, et al. Growth, electrical and optical studies, and terahertz wave generation of organic NLO crystals: DSTMS[J]. *CrystEngComm*, 2019, 21(17): 2754-2761.
- [57] Wang T H, Xu K, Wang G J, et al. Growth, THz properties, and Hirshfeld surface studies of 4-N, N-dimethylamino-4-N-methyl-stilbazolium 2, 4, 6-trimethylbenzenesulfonate single crystal[J]. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 2022, 33(7): 4704-4711.
- [58] Li Y, Wu Z A, Zhang X Y, et al. Crystal growth and terahertz wave generation of organic NLO crystals: OH1[J]. *Journal of Crystal Growth*, 2014, 402: 53-59.
- [59] Junginger F, Sell A, Schubert O, et al. Single-cycle multiterahertz transients with peak fields above 10 MV/cm[J]. *Optics Letters*, 2010, 35(15): 2645-2647.
- [60] Bai Y, Cheng C J, Li X L, et al. Intense broadband mid-infrared pulses of 280 MV/cm for supercontinuum generation in gaseous medium[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(4): 667-670.
- [61] Taniuchi T, Okada S, Nakanishi H. Widely tunable terahertz-wave generation in an organic crystal and its spectroscopic application[J]. *Journal of Applied Physics*, 2004, 95(11): 5984-5988.
- [62] Liu P X, Xu D G, Li Y, et al. Widely tunable and monochromatic terahertz difference frequency generation with organic crystal DSTMS[J]. *EPL (Europhysics Letters)*, 2014, 106(6): 60001-60006.
- [63] Liu P X, Zhang X Y, Yan C, et al. Widely tunable and monochromatic terahertz difference frequency generation with organic crystal 2-(3-(4-hydroxystyryl)-5, 5-dimethylcyclohex-2-enylidene) malononitrile[J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 108(1): 011104.
- [64] Liu B, Bromberger H, Cartella A, et al. Generation of

- narrowband, high-intensity, carrier-envelope phase-stable pulses tunable between 4 and 18 THz[J]. *Optics Letters*, 2016, 42(1): 129-131.
- [65] Cook D J, Hochstrasser R M. Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air[J]. *Optics Letters*, 2000, 25(16): 1210-1212.
- [66] Bartel T, Gaal P, Reimann K, et al. Generation of single-cycle THz transients with high electric-field amplitudes[J]. *Optics Letters*, 2005, 30(20): 2805-2807.
- [67] Chen Y Q, Yamaguchi M, Wang M F, et al. Terahertz pulse generation from noble gases[J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 91(25): 251116.
- [68] Rodriguez G, Dakovski G L. Scaling behavior of ultrafast two-color terahertz generation in plasma gas targets: energy and pressure dependence[J]. *Optics Express*, 2010, 18(14): 15130-15143.
- [69] Zhao H, Zhang L L, Huang S X, et al. Terahertz wave generation from noble gas plasmas induced by a wavelength-tunable femtosecond laser[J]. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 2018, 8(3): 299-304.
- [70] Oh T I, Yoo Y J, You Y S, et al. Generation of strong terahertz fields exceeding 8 MV/cm at 1 kHz and real-time beam profiling [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 105(4): 041103.
- [71] Kuk D, Yoo Y J, Rosenthal E W, et al. Generation of scalable terahertz radiation from cylindrically focused two-color laser pulses in air[J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 108(12): 121106.
- [72] Clerici M, Peccianti M, Schmidt B E, et al. Wavelength scaling of terahertz generation by gas ionization[J]. *Physical Review Letters*, 2013, 110(25): 253901.
- [73] Fedorov V Y, Tzortzakis S. Optimal wavelength for two-color filamentation-induced terahertz sources[J]. *Optics Express*, 2018, 26(24): 31150-31159.
- [74] Wang W M, Kawata S, Sheng Z M, et al. Efficient terahertz emission by mid-infrared laser pulses from gas targets[J]. *Optics Letters*, 2011, 36(14): 2608-2610.
- [75] Koulouklidis A D, Gollner C, Shumakova V, et al. Observation of extremely efficient terahertz generation from mid-infrared two-color laser filaments[J]. *Nature Communications*, 2020, 11: 292.
- [76] Hale G M, Query M R. Optical constants of water in the 200-nm to 200- μ m wavelength region[J]. *Applied Optics*, 1973, 12(3): 555-563.
- [77] Zhang L L, Wang W M, Wu T, et al. Strong terahertz radiation from a liquid-water line[J]. *Physical Review Applied*, 2019, 12(1): 014005.
- [78] Feng S J, Dong L Q, Wu T, et al. Terahertz wave emission from water lines[J]. *Chinese Optics Letters*, 2020, 18(2): 023202.
- [79] Dey I, Jana K, Fedorov V Y, et al. Highly efficient broadband terahertz generation from ultrashort laser filamentation in liquids[J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 1184.
- [80] Balakin A V, Coutaz J L, Makarov V A, et al. Terahertz wave generation from liquid nitrogen[J]. *Photonics Research*, 2019, 7(6): 678-686.
- [81] Cao Y Q, E Y W, Huang P J, et al. Broadband terahertz wave emission from liquid metal[J]. *Applied Physics Letters*, 2020, 117(4): 041107.
- [82] Gopal A, Singh P, Herzer S, et al. Characterization of 700 μ J T rays generated during high-power laser solid interaction[J]. *Optics Letters*, 2013, 38(22): 4705-4707.
- [83] Liao G Q, Li Y T. Review of intense terahertz radiation from relativistic laser-produced plasmas[J]. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2019, 47(6): 3002-3008.
- [84] Zeng Y S, Zhou C L, Song L W, et al. Guiding and emission of millijoule single-cycle THz pulse from laser-driven wire-like targets [J]. *Optics Express*, 2020, 28(10): 15258-15267.
- [85] Tian Y, Liu J S, Bai Y F, et al. Femtosecond-laser-driven wire-guided helical undulator for intense terahertz radiation[J]. *Nature Photonics*, 2017, 11(4): 242-246.
- [86] 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.
- [87] Nicoletti D, Cavalleri A. Nonlinear light - matter interaction at terahertz frequencies[J]. *Advances in Optics and Photonics*, 2016, 8(3): 401-464.
- [88] Ovchinnikov A V, Chefonov O V, Agranat M B, et al. Optical second harmonic generation induced by picosecond terahertz pulses in centrosymmetric antiferromagnet NiO[J]. *JETP Letters*, 2016, 104(7): 441-448.
- [89] Ovchinnikov A V, Chefonov O V, Mishina E D, et al. Second harmonic generation in the bulk of silicon induced by an electric field of a high power terahertz pulse[J]. *Scientific Reports*, 2019, 9: 9753.
- [90] Cornet M, Degert J, Abraham E, et al. Terahertz-field-induced second harmonic generation through Pockels effect in zinc telluride crystal[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(20): 5921-5924.
- [91] Schubert O, Hohenleutner M, Langer F, et al. Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations[J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(2): 119-123.
- [92] Zalden P, Song L W, Wu X J, et al. Molecular polarizability anisotropy of liquid water revealed by terahertz-induced transient orientation[J]. *Nature Communications*, 2018, 9: 2142.
- [93] Zhao H, Tan Y, Zhang L L, et al. Ultrafast hydrogen bond dynamics of liquid water revealed by terahertz-induced transient birefringence[J]. *Light: Science & Applications*, 2020, 9: 136.
- [94] Bodrov S, Sergeev Y, Murzanev A, et al. Terahertz induced optical birefringence in polar and nonpolar liquids[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2017, 147(8): 084507.
- [95] Hoffmann M C, Brandt N C, Hwang H Y, et al. Terahertz Kerr effect[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 95(23): 231105.
- [96] Sajadi M, Wolf M, Kampfrath T. Transient birefringence of liquids induced by terahertz electric-field torque on permanent molecular dipoles[J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 14963.
- [97] Cornet M, Degert J, Abraham E, et al. Terahertz Kerr effect in gallium phosphide crystal[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2014, 31(7): 1648-1652.
- [98] Sajadi M, Wolf M, Kampfrath T. Terahertz-field-induced optical birefringence in common window and substrate materials[J]. *Optics Express*, 2015, 23(22): 28985-28992.
- [99] Shen Y, Watanabe T, Arena D A, et al. Nonlinear cross-phase modulation with intense single-cycle terahertz pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99(4): 043901.
- [100] Vicario C, Shalaby M, Hauri C P. Subcycle extreme nonlinearities in GaP induced by an ultrastrong terahertz field[J]. *Physical Review Letters*, 2017, 118(8): 083901.
- [101] 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.
- [102] Li X, Qiu T, Zhang J H, et al. Terahertz field-induced ferroelectricity in quantum paraelectric SrTiO₃[J]. *Science*, 2019, 364(6445): 1079-1082.
- [103] Kampfrath T, Sell A, Klatt G, et al. Coherent terahertz control of antiferromagnetic spin waves[J]. *Nature Photonics*, 2011, 5(1): 31-34.
- [104] Baierl S, Mentink J H, Hohenleutner M, et al. Terahertz-driven nonlinear spin response of antiferromagnetic nickel oxide[J]. *Physical Review Letters*, 2016, 117(19): 197201.
- [105] Balos V, Bierhance G, Wolf M, et al. Terahertz-magnetic-field induced ultrafast faraday rotation of molecular liquids[J]. *Physical Review Letters*, 2020, 124(9): 093201.
- [106] Jnawali G, Rao Y, Yan H G, et al. Observation of a transient decrease in terahertz conductivity of single-layer graphene induced by ultrafast optical excitation[J]. *Nano Letters*, 2013, 13(2): 524-530.
- [107] Iida R, Satoh T, Shimura T, et al. Spectral dependence of photoinduced spin precession in DyFeO₃[J]. *Physical Review B*, 2011, 84(6): 064402.

- [108] Zhou R Z, Jin Z M, Li G F, et al. Terahertz magnetic field induced coherent spin precession in YFeO_3 [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 100(6): 061102.
- [109] Li G F, Jin Z M, Xue X, et al. Terahertz coherent control of surface plasmon polariton propagation in subwavelength metallic hole arrays[J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 100(19): 191115.
- [110] Zhang Z Y, Hu M C, Jia T Y, et al. Suppressing the trapping process by interfacial charge extraction in antimony selenide heterojunctions[J]. *ACS Energy Letters*, 2021, 6(5): 1740-1748.
- [111] Zou Y Q, Ma Q S, Zhang Z Y, et al. Observation of ultrafast interfacial exciton formation and relaxation in graphene/ MoS_2 heterostructure[J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2022, 13(23): 5123-5130.
- [112] Quan C J, Xing X A, Jia T Y, et al. Hot carrier transfer in PtSe_2 /graphene enabled by the hot phonon bottleneck[J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2022, 13(40): 9456-9463.
- [113] Xing X A, Zhang Z Y, Quan C J, et al. Tunable ultrafast electron transfer in WSe_2 - graphene heterostructures enabled by atomic stacking order[J]. *Nanoscale*, 2022, 14(19): 7418-7425.
- [114] Jin Z M, Peng Y, Fang Y Q, et al. Photoinduced large polaron transport and dynamics in organic-inorganic hybrid lead halide perovskite with terahertz probes[J]. *Light: Science & Applications*, 2022, 11: 209.
- [115] Ma Q, Krishna Kumar R, Xu S Y, et al. Photocurrent as a multiphysics diagnostic of quantum materials[J]. *Nature Reviews Physics*, 2023, 5(3): 170-184.
- [116] Zhang X C, Hu B B, Darrow J T, et al. Generation of femtosecond electromagnetic pulses from semiconductor surfaces [J]. *Applied Physics Letters*, 1990, 56(11): 1011-1013.
- [117] Braun L, Mussler G, Hruban A, et al. Ultrafast photocurrents at the surface of the three-dimensional topological insulator Bi_2Se_3 [J]. *Nature Communications*, 2016, 7: 13259.
- [118] Fan Z Y, Xu M Z, Huang Y Y, et al. Terahertz surface emission from MoSe_2 at the monolayer limit[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2020, 12(42): 48161-48169.
- [119] Huang Y Y, Zhu L P, Zhao Q Y, et al. Surface optical rectification from layered MoS_2 crystal by THz time-domain surface emission spectroscopy[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2017, 9(5): 4956-4965.
- [120] Si K Y, Huang Y Y, Zhao Q Y, et al. Terahertz surface emission from layered semiconductor WSe_2 [J]. *Applied Surface Science*, 2018, 448: 416-423.
- [121] Song F C, Zu X Z, Zhang Z Y, et al. Ultrafast drift current terahertz emission amplification in the monolayer WSe_2 /Si heterostructure[J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2022, 13(49): 11398-11404.
- [122] Suo P, Xia W, Zhang W J, et al. Terahertz emission on the surface of a van der Waals magnet CrSiTe_3 [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2020, 14(7): 2000025.
- [123] Tong M Y, Hu Y Z, He W B, et al. Ultraefficient terahertz emission mediated by shift-current photovoltaic effect in layered gallium telluride[J]. *ACS Nano*, 2021, 15(11): 17565-17572.
- [124] Guzelturk B, Belisle R A, Smith M D, et al. Terahertz emission from hybrid perovskites driven by ultrafast charge separation and strong electron - phonon coupling[J]. *Advanced Materials*, 2018, 30(11): 1704737.
- [125] Yue X Y, Wang C W, Zhang B, et al. Real-time observation of the buildup of polaron in α -FAPbI₃[J]. *Nature Communications*, 2023, 14: 917.
- [126] Luo L, Cheng D, Song B Q, et al. A light-induced phononic symmetry switch and giant dissipationless topological photocurrent in ZrTe_5 [J]. *Nature Materials*, 2021, 20(3): 329-334.

Research Progress on Ultrafast Intense Laser Based High-Field Terahertz Generation and Application on Non-Equilibrium State Materials

Wang Kang^{1,3}, Fang Yifei¹, Cheng Xi², Zhang Zeyu², Song Liwei¹, Du Juan²,
Tian Ye¹, Leng Yuxin^{1,2*}

¹State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

²School of Physics and Optoelectronic Engineering, Hangzhou Institute for Advanced Study, University of Chinese Academy of Sciences, Hangzhou 310024, Zhejiang, China;

³College of Optical Electrical and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China

Abstract

Significance Terahertz (THz) radiation located between the optical and microwave frequency region is known as the “THz gap” (0.1–10 THz). THz radiation has many unique characteristics, such as low photon energy, transmission of organic materials, and high spectral resolution. These unique properties confirm that THz radiation has significant application value in multiple fields such as information communication, biomedicine nondestructive testing, and scientific research. Traditional THz application is primarily confined to the weak field passive detection linear region, while the transient strong field THz can be used to actively regulate the state of matter. The high-field THz radiation source has strong application demand in nonlinear optics, quantum and condensed matter physics, and many other fields. On one hand, as a unique means of manipulation, strong field THz waves can be used for the coherent regulation of materials, such as that of the electrical and phonon states and phase transition induction. Meanwhile, it can also be utilized as a special diagnostic means for transient spectroscopy diagnosis and single imaging. The pump-probe technique corresponding to the strong field THz wave can be used to characterize ultrafast dynamic processes of energetic materials or plasmas under extreme conditions.

An ultrafast laser provides a stable reliable excitation source for THz generation and detection. THz waves can be generated using ultrafast laser pumping and various excitation media, such as photoconductive antennas, nonlinear crystals, metallic copper foil,

air, and liquid water. With continuously increasing THz field strength, matter manipulation using high field THz and nonlinear spectroscopy in the THz region has been recently promoted. Furthermore, it has been demonstrated that THz absorption spectroscopy could assist in revealing excited state dynamics, and that THz emission spectroscopy could also be used to distinguish the strong coupling of carriers, excitons, phonons, and other elementary excitations.

Progress In this study, THz sources based on an ultrafast laser are reviewed. Ultrafast laser-driven photoconductive antennas are a traditional THz source widely used for THz time-domain spectroscopy (TDS) (Fig. 1). Recently, Darrow *et al.* from Columbia University, demonstrated that large aperture antenna (LAPCA) produces a much higher THz field than a traditional photoconductive antenna. You *et al.* from Columbia University and Ropagnol *et al.* from the University of Quebec used different semiconductor materials as the LAPCA substrate, both of which produce high-field THz radiation. Ultrafast laser-driven optical rectification (OR) (Fig. 2) and difference frequency generation (DFG) in nonlinear crystals are important methods for high-field THz generation. Hebling *et al.* from the University of Pécs, proposed the tilted pulse front technique (TPFP) to fulfill the phase mismatch condition between the infrared pump pulse and the generated THz pulse in lithium niobate (LN) crystal (Fig. 3). The energy conversion efficiency from the pump to THz is further improved using cryogenic technology. Besides LN, organic crystals such as DAST, DSTMS, and OH1, have also been used for THz generation via OR owing to their high nonlinear coefficients and collinear phase-matching. Using DSTMS, Vicario *et al.* from Paul Scherrer Institute, achieved an ultra-high THz energy of 0.9 mJ at a pumping wavelength of 1250 nm (Fig. 4). Liu *et al.* from the Max Planck Institute for the Structure and Dynamics of Matter generated high power and wideband tunable THz waves using DFG in DSTMS crystals (Fig. 5). Tunable THz is also generated from other crystals such as GaSe *et al.* based on DFG technology. THz radiation is emitted from the intense laser-driven plasma. Cook *et al.* from the University of Pennsylvania, first proposed that air plasma produced by a two-color laser field could generate THz radiation. Koulouklidis *et al.* from the Institute of Electronic Structure and Laser of Greece, obtained a record value of 0.185 mJ THz pulse energy, which corresponds to an electric field strength of 100 MV/cm based on a two-color field scheme (Fig. 6). For liquid plasma, Jin *et al.* from University of Rochester generated THz radiation from liquid water film driven by an ultrashort laser pulse (Fig. 7). The development of high-field THz generation based on ultrahigh laser pumped various liquid media has been initiated. For solid plasma, the working principle of high-field THz radiation generated by solid target intense laser pumping is described (Fig. 8). Liao *et al.* from Shanghai Jiaotong University, acquired extreme THz radiation from metal copper foil targets pumped by ultra-short and ultra-intense lasers. Liao *et al.* identified that intense laser pumping of metal targets into various materials can produce strong THz radiation.

The THz wave is a novel and powerful tool for investigating the fundamental physics process of vibration rotation, spin precession, and electron acceleration (Fig. 9). The application of strong-field THz waves in matter manipulation is concluded. Furthermore, the application of time-resolved THz spectroscopy is introduced (Fig. 10). Topological insulators and semiconductors pumped by the ultrafast laser may emit THz radiation which indicates the electron dynamics in materials. Broadband THz waves of different polarization directions radiate from a topological insulator surface induced by femtosecond laser pulses (Fig. 11). In WSe₂/Si heterojunction, THz radiation is enhanced by drift current amplification (Fig. 12). A THz wave is generated by the laser-induced polaron in FAPbI₃ (Fig. 13). Therefore, THz radiation can be used for both manipulation and detection of material dynamics.

Conclusions and Prospects Recent process regarding THz generation based on an ultrafast laser is reviewed, including the working principle and existing problems. THz radiation applications in physical state regulation are summarized. THz radiation has broad application prospects in the characterization and control of matter properties.

Key words laser technique; ultrafast laser; high-field terahertz wave; matter manipulation