

多色飞秒激光场产生高能量超宽带太赫兹辐射的研究进展

卢晨晖¹, 庄龙振¹, 张志文², 刘则甫², 刘一^{2*}

¹上海工程技术大学机械与汽车工程学院, 上海 201620;

²上海理工大学光电信息与计算机工程学院, 上海 200093

摘要 飞秒激光聚焦在空气中能够产生高能量超宽带的太赫兹辐射, 这种强场太赫兹辐射在物态操控、太赫兹通信、生物医学成像等领域具有重要的应用价值。采用双色乃至多色激光场是提高气体等离子体中太赫兹辐射强度的关键路径之一。本文回顾了多色场驱动空气等离子体太赫兹辐射源的发展历程, 按照单色场、双色场到三色场的发展脉络, 从实验方案、理论原理、优化探索三方面综述了国内外多色飞秒光场驱动气体等离子体太赫兹辐射的研究现状和最新成果, 并对该方向的未来发展进行了展望。

关键词 非线性光学; 太赫兹技术; 强场太赫兹辐射源; 多色飞秒激光场; 激光与等离子体相互作用

中图分类号 O437

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL230722

1 引言

太赫兹 (THz) 辐射的频谱介于微波和红外辐射之间, 其范围能够覆盖众多物质晶格振动和分子转动的能级, 因而太赫兹辐射在物态调控^[1-2]、无损检测^[3-5]、生物医学成像^[6-8]等领域具有广阔的应用前景。许多电子学和光学方法能够被用于太赫兹辐射的产生^[9-11], 但是限制太赫兹科学与应用的关键问题之一是如何进一步提高太赫兹辐射的强度。因此, 探索高能量太赫兹辐射产生方案一直是该领域的重点和热点问题。

飞秒激光与空气相互作用产生等离子体的过程能够向外辐射超宽带的太赫兹脉冲, 其频谱范围最高能够达到 0~200 THz^[12], 远大于光电导天线^[13-14]和光学整流晶体^[15-16]等常用太赫兹源的频谱范围 (0~10 THz)。气体等离子体辐射源可将太赫兹的频谱范围进行极大拓展。此外, 相比于固态太赫兹源, 空气太赫兹源具有可再生和无损伤阈值等优点, 因而成为研究强场太赫兹辐射的主要方案之一, 受到了研究人员的重点关注^[11]。在该方案中, 常用的实验方法是将 800 nm 飞秒激光通过 BBO 晶体进行倍频产生 400 nm 的光场, 然后再把这种双色光场同时聚焦在空气中产生等离子体。在产生等离子体过程中, 由于光场的不对称性, 电子的运动能够产生定向的横向电流, 从而向外辐射太赫兹波段的电磁波。人们将这种 800 nm + 400 nm 激光组合产生太赫兹的方法称为双色场方法。在双色场机制

的探索中, 研究人员详细研究了该方法中激光的相对相位^[17-19]、脉宽^[20-21]、强度比值^[22-25]、偏振^[26-28]等参量对太赫兹辐射强度的影响, 并发现了中红外波段的超快泵浦激光也可以用于高效产生太赫兹辐射。在研究过程中, 科研人员认识到双色合成光场的不对称性是有效产生太赫兹辐射的关键。基于这一认识, 研究人员进一步提出了不同波段激光组合的三色场甚至多色场方案, 这些方案可以构造具有更大不对称性的光场, 使太赫兹辐射的强度进一步提高。

本文针对强场太赫兹辐射源效率亟待提升的现状, 聚焦多色飞秒光场技术产生强太赫兹辐射方案的历史沿革、实验方法、理论研究和优化探索, 重点对该领域的国内外最新研究成果进行论述, 分析了多色场方案的研究趋势, 并对这一研究领域的未来进行了展望。

2 双色场气体太赫兹源的发展历程

随着飞秒激光技术的发展, 飞秒激光的强度和脉宽等各项性能不断提升, 这使得研究人员能够不断发现并探索强场激光与物质相互作用的一些新效应, 研究人员由此发现了气体等离子体中的太赫兹辐射现象。1993年, Hamster等^[29]首次在实验中观察到了单色飞秒激光聚焦在气体介质中产生太赫兹辐射的现象; 2000年, Cook等^[30]利用双色飞秒激光得到了更高强度的太赫兹辐射。这些开创性的研究成果使得气体太赫兹源一步一步得到了国内外的重视。下面将简要

收稿日期: 2023-04-13; 修回日期: 2023-05-15; 录用日期: 2023-06-19; 网络首发日期: 2023-07-05

基金项目: 国家自然科学基金 (12034013)

通信作者: *yi.liu@usst.edu.cn

回顾气体等离子体太赫兹辐射源的发展历程。

2.1 单色激光场产生的太赫兹辐射

早在 1993 年,美国加州大学伯克利分校的 Hamster^[29]就在实验中观察到了单色场激发等离子体产生的太赫兹辐射。他使用的实验装置比较简单,如图 1 所示。他将激光器引出的能量为 500 mJ、脉冲宽度为 120 fs 的激光直接聚焦到气体介质中产生等离子体,通过太赫兹波段干涉仪测量辐射光谱信息或者直接测量辐射的能量,详细探测和研究了太赫兹频段的电磁辐射。他将单色激光产生太赫兹辐射的物理机制归因于有质动力势(ponderomotive force)引起的横向电子加速。当超快激光在空气等离子体中非线性传播时,会受到衍射效应、能量耗散、等离子体散焦、非线性克尔效应等的影响,导致激光场时空强度形状发生变化,其强度梯度的变化对应着有质动力势。在有质动力势的作用下,电子被加速并随后发生振荡,由此产生的等离子体电流能够向外辐射包括太赫兹波在内的电磁辐射。

利用单色激光场产生太赫兹辐射的能量转换效率并不高,激光场到太赫兹场的能量转换效率低于 10^{-7} ,从而限制了太赫兹辐射的进一步应用。2007 年左右,法国巴黎综合理工大学的 André Mysyrowicz 教授课题组对高能 800 nm 超快激光成丝传输过程中的太赫兹辐射性质及其能量提升进行了大量研究。D'Amico 等^[31]利用具有空间分辨率的太赫兹探测器发现了前向辐射的太赫兹脉冲呈锥形辐射形状,而且其偏振为径向偏振,如图 2 所示。基于此,他们提出单色飞秒光场激发气体等离子体产生太赫兹的机制为有质动力激发产生了纵向电子电流。之后,Houard 等^[32]在等离子体

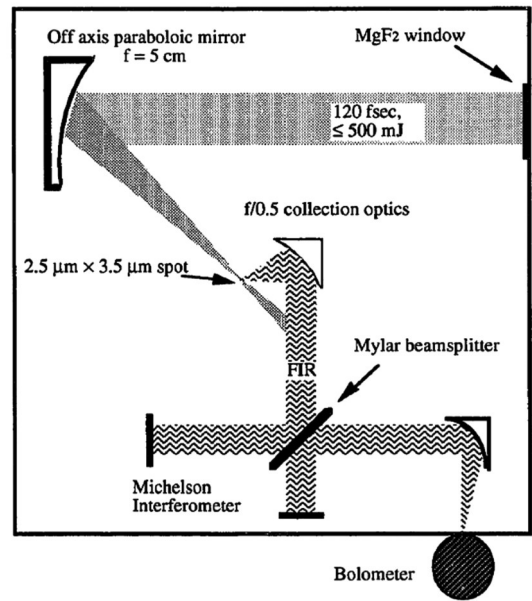


图 1 单色飞秒激光作用于气体靶产生太赫兹辐射的实验和探测装置示意图^[29]

Fig. 1 Experimental setup for the THz generation and detection by one-color femtosecond laser pulse with the gas target^[29]

的侧向施加直流电场来控制电子电流的方向和幅度,不仅实现了太赫兹辐射能量三个数量级的增强,而且实现了对太赫兹辐射偏振和辐射模式的控制。Liu 等^[33]提出了一种并列光丝方案,该方案利用一个等离子体丝产生的太赫兹辐射为另一个等离子体丝提供偏置电场,控制其等离子体电流,使太赫兹辐射能量提升了一个数量级。该方案具有远程控制 and 增强太赫兹辐射的潜力,因为其不需要外加直流电场。

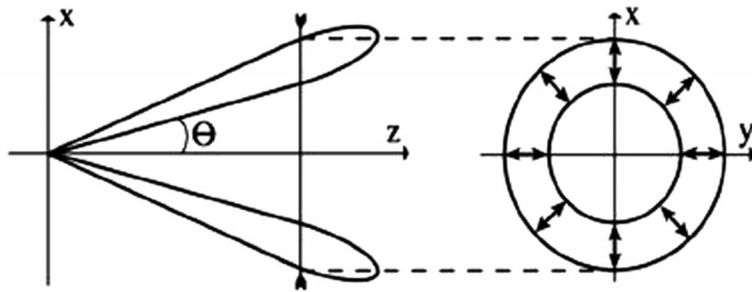


图 2 太赫兹辐射偏振状态示意图^[31]

Fig. 2 Polarization diagram of THz emission^[31]

2.2 双色激光场驱动的太赫兹辐射

采用双色飞秒光场驱动空气等离子体产生太赫兹辐射的首个报道出现在 2000 年。宾夕法尼亚大学的 Cook 等^[30]将基频飞秒激光及其通过 BBO 产生的倍频光共同聚焦在空气中产生了等离子体。在该实验中,他们首次观察到了基于双色激光场的太赫兹辐射。后续研究表明其辐射的强度要远超过单色激光场激发的强度。随后,2004 年,Kress 等^[34]基于此方法研究了 BBO 晶体到焦点的距离对太赫兹辐射的影

响。由于空气对基频光和倍频光的折射率不同,因此,改变晶体到焦点的距离能够控制双色光场的相对相位。通过研究他们发现太赫兹辐射的强度与双色光场的相对相位密切相关,实验示意图和测量结果如图 3 所示。上述双色光场的实验方案设置简单(在基频光的传播路径上加入一块 BBO 晶体用于产生倍频光场,通过透镜将基频激光和倍频光聚焦在空气中就能够向外辐射 100 kV/cm 量级的太赫兹波),相对于单色场方法,大大提高了太赫兹辐射

的强度。在前期研究中,科研人员提出了四波混频模型,用来解释太赫兹辐射强度与双色场相位的依赖关系,即

$$E_{\text{THz}} \propto \chi^{(3)}(E_{\omega})^2 E_{2\omega} \sin(\varphi), \quad (1)$$

式中: E_{THz} 表示太赫兹波的电场强度; $\chi^{(3)}$ 表示三阶非线性极化率; E_{ω} 和 $E_{2\omega}$ 分别表示基频光场及其倍频光场在

频域上的电场强度; φ 表示相对相位。相对相位 φ 由BBO到焦点的距离 d 调节, $\varphi = \omega/[c(2n_{2\omega} - n_{\omega})d]$,这里 n_{ω} 和 $n_{2\omega}$ 分别代表基频光及其倍频光在空气中的折射率。从图3所示的详细数据中可以清晰地看出,太赫兹的振幅随着双色场相对相位的变化而变化,并且有着明显的振荡特性。

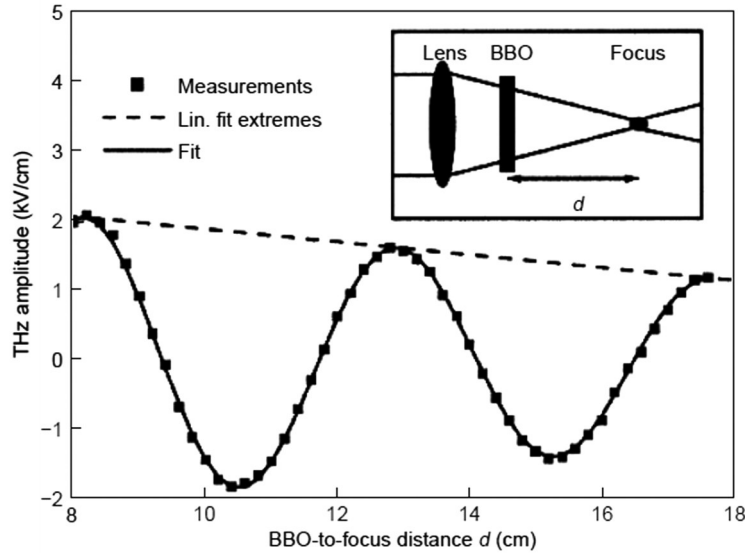


图3 双色场太赫兹实验示意图和太赫兹振幅与BBO到焦点距离的关系图^[34]

Fig. 3 Experimental schematic for the two-color scheme of THz generation and THz amplitude versus BBO-to-focus distance^[34]

2.3 双色场驱动太赫兹辐射的物理机制研究

在上述早期的双色场实验中,太赫兹辐射的物理过程通常用式(1)所示的四波混频模型解释,但是空气的三阶非线性极化率的来源问题始终没有解决。无论是束缚电子、自由电子还是有质动力势,其引起的三阶非线性极化率不足以全面解释太赫兹辐射的强度。美国马里兰大学的Kim等^[35-37]在双色场的太赫兹辐射方面进行了一系列工作。他们研究了太赫兹的强度与双色激光场相对相位的依赖关系。他们通过实验和理论分析得出,当双色激光的相对相位为 $\pi/2$ 时,太赫兹辐射的能量最强,并在此基础上提出了光电流模型。光电流模型主要包含两个方面:一是基于激光强度的强场电离,二是光场不对称性引起的电子漂移运动。该模型由于物理图像清晰,与实验结果能够很好地吻合,成为了气体等离子体中太赫兹辐射的基本模型,并被后续大多数研究工作参考和引用。基于Kim等^[35]的研究工作,人们可以清楚地理解太赫兹辐射的产生过程以及其与相位之间依赖关系的成因。从图4(a)中可以看出,当双色场的相对相位 $\theta = \pi/2$ 时,激光场的时域波形的不对称性最明显。通常情况下,气体分子在光场峰值处的电离概率最大,此后电离出的自由电子会随着激光振荡而运动,不同时刻电离的电子偏向于不同的方向运动,这种定向运动的速度通常被称为漂移速度。从图4(b)中可以看出:如果光场是对称的,从峰值位置产生的电子的最终偏移是对称的,产生的

电子电流相互抵消,而一旦光场不对称,电子的漂移速度就会不同,这会使电子的运动出现向一侧漂移的现象。考虑到所有电子的运动情况,产生的电子电流在幅度上不能相互抵消,从而会在亚皮秒量级出现非零的低频(相对于光频而言)电流项,这一瞬态电流将产生太赫兹波段的电磁辐射。

2.3.1 光电流模型

经过多个理论工作小组的完善^[21,25,36-39],光电流模型已具备了较为完整的框架,并被广泛用来解释和研究等离子体点源产生的太赫兹辐射强度。该模型又被称为局域的光电流模型(local current model)。在该模型中,最基本的双色场通常表示为

$$E(t) = \exp[-2\ln(2t^2)/\tau^2] \cdot$$

$$[E_1 \cos(\omega_0 t) + E_2 \cos(2\omega_0 t + \phi)], \quad (2)$$

式中: E_1 和 E_2 分别代表基频激光及其二次谐波激光在时域上的场强; ω_0 代表基频光的中心频率; t 表示时间; τ 表示激光场的脉宽。当激光场的强度在 $10^{14} \sim 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 之间时,电子主要通过隧穿电离逸出,电离率通常可以通过分子电离的ADK模型(Ammosov-Delone-Krainov)和静态的隧穿模型(ST模型)来计算。两种模型在计算气体分子的电离率方面所展现出的趋势是基本一致的^[40]。为简便起见,可使用ST模型来计算电离率,即

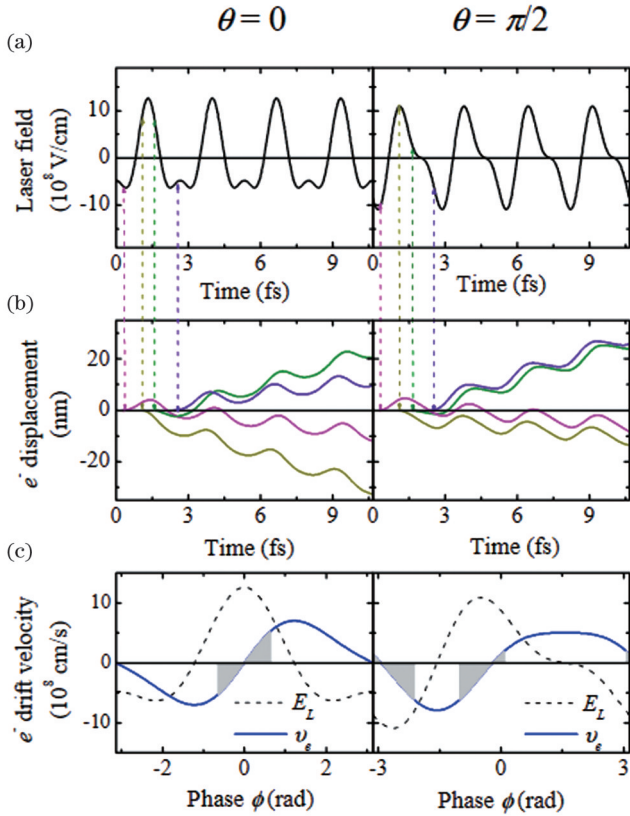


图 4 不同相位下的双色场形状、电子轨迹和电子漂移速度示意图^[35]。(a)相对相位为 0 和 $\pi/2$ 时的电场形状；(b)相对相位为 0 和 $\pi/2$ 时的电子轨迹；(c)相对相位为 0 和 $\pi/2$ 时的漂移速度

Fig. 4 Schematics of the laser field shape, electron trajectory and electron drift velocity for the two-color laser pulse at different phases^[35]. (a) Laser field shape for the two-color laser pulses with a relative phase 0 and $\pi/2$; (b) electron trajectory with a relative phase 0 and $\pi/2$; (c) electron drift velocity with a relative phase 0 and $\pi/2$

$$W(t) = \frac{\alpha}{|\epsilon(t)|} \exp\left[-\frac{\beta}{|\epsilon(t)|}\right], \quad (3)$$

式中： $\epsilon(t) = E(t)/\epsilon_a$ 是原子单位下的电场，其中 $\epsilon_a = 5.14 \times 10^9$ V/cm； $\alpha = 4\omega_a r^{5/2}$ ，其中 $\omega_a = 4.13 \times 10^{16}$ s⁻¹ 是原子单位下的频率单位， r 是气体分子与氢原子电离势的比值； $\beta = (2/3)r^{3/2}$ 。空气中氮气的电离势为 15.56 eV，氢原子的电离势为 13.6 eV。通过电离率可以计算出电子密度随时间的变化，即

$$\frac{dN_e(t)}{dt} = W(t) [N_g - N_e(t)], \quad (4)$$

式中： $N_e(t)$ 是电子密度随时间的变化； N_g 是初始中性气体的密度。电子电离离开母体分子后 t 时刻的速度可以表示为

$$v(t, t') = -\frac{e}{m} \int_{t'}^t dt'' E(t'') \exp[-\gamma(t-t'')], \quad (5)$$

式中： e 是电子电荷； m 是电子质量； t' 是电离时刻； γ 是唯象的碰撞概率 ($\gamma \approx 5$ ps⁻¹)。当考虑所有电离时刻电

子的运动后，电子运动所形成的整体电子电流可以表示为

$$J(t) = e \int_{-\infty}^t v(t, t') dN_e(t'). \quad (6)$$

这种随时间变化的电子电流将向外辐射电磁波，其中包含了太赫兹波段的电磁辐射，因此最终产生的太赫兹辐射的场强与电流的变化成正比，即

$$E_{\text{THz}} \propto \frac{d}{dt} J(t). \quad (7)$$

再通过傅里叶变换 $E_{\text{THz}}(\omega) = \mathcal{F}[E_{\text{THz}}(t)]$ ，就可以得到太赫兹辐射的频谱信息。

2.3.2 光电流模型的离散分析

2011 年，Babushkin 等^[41]将光电流模型进行离散化，从更加微观及解析的层面说明了双色场太赫兹产生的物理机制。他们的解析模型主要考虑了激光峰值处自由电子的产生情况，将电子密度随时间的连续变化处理成激光峰值处电子密度的阶梯上升，即

$$\rho(t) = \sum_n \delta\rho_n H_n(t), \quad (8)$$

式中： $\delta\rho_n$ 代表每次电离事件产生的电子密度； $H_n(t) = H(t - t_n)$ 是阶梯函数，其中 t_n 代表电离时刻。从图 5(c) 中可以看出，电子电离主要发生在激光的峰值位置处，每次电离都会使整体的电子密度有所增大，因此把峰值位置处的电离称为电离事件。这样就将光电流模型进行了离散化处理。每个电离事件的强度由此时刻的电离电子密度和电子随后的漂移速度决定，即

$$E^j(\omega) \propto \sum_n C_n \exp(i\omega t_n), \quad (9)$$

式中： $C_n = e\delta\rho_n v_f(t_n)$ 是单个电离事件的强度，其中 $v_f(t_n)$ 是电离电子的漂移速率， $v_f(t) = \frac{e}{m} \int_{-\infty}^t E(\tau) \exp[\gamma(\tau - t)] d\tau$ 。

如图 5(e) 所示，在整个激光脉冲的时间尺度内，众多电离事件 ($-16 < n < 16$) 的相干叠加使得太赫兹的频谱在高频部分相干相消，在低频部分相干相长，最终决定了太赫兹辐射的强度和频谱范围。

光电流模型已被广泛地用于分析太赫兹实验结果。上述关于双色场太赫兹辐射物理机制的探讨，让研究人员意识到不对称的激光场是在空气等离子体中产生太赫兹辐射的重要条件，它决定了自由电子的产生和运动以及最终的太赫兹辐射强度。因此，构造时域不对称的激光场是提高太赫兹辐射的重要方法之一，受到研究人员的极大关注。

2.3.3 粒子云模拟 (Particle in Cell) 太赫兹辐射

粒子云模拟即 Particle in Cell (PIC) 已被广泛应用于强飞秒激光与等离子体相互作用的分析中。它可以根据不同的物理过程及主要影响因素调整模拟过程，以研究不同的物理问题，具有计算速度快、精度高等优点。2008 年，中国科学院物理研究所的 Wang 等^[42]将电子的电离、电子的整体运动以及对应的电磁波产生

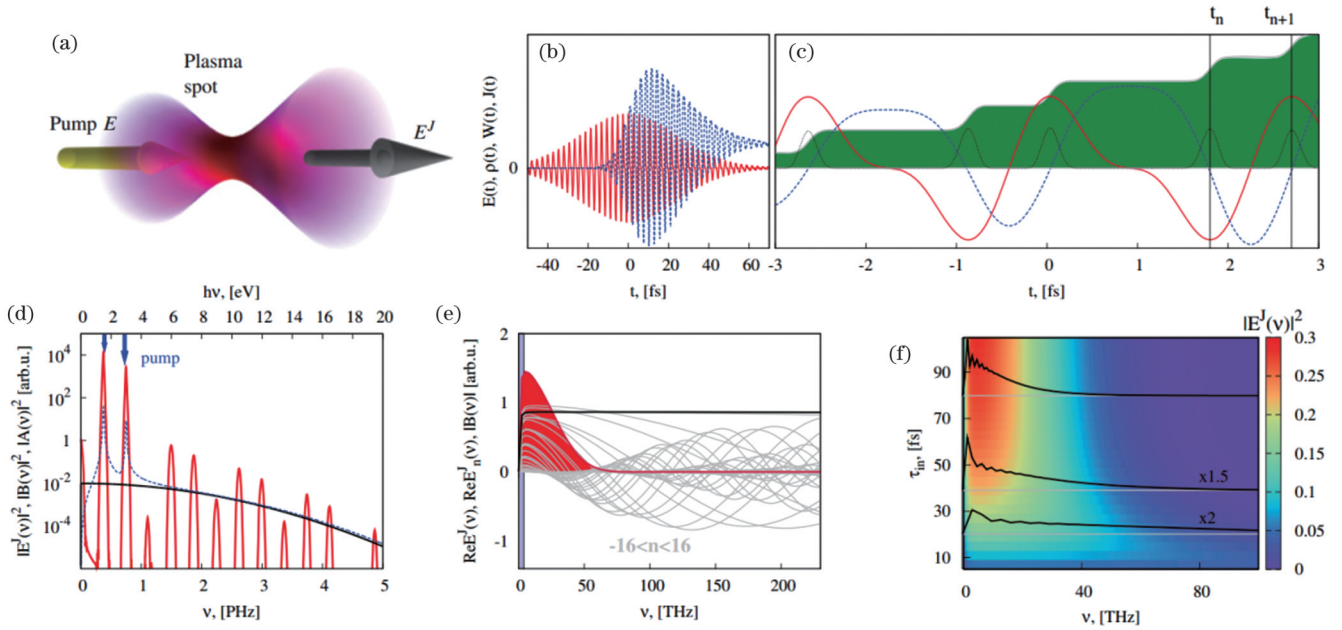


图 5 双色场太赫兹产生机制和光谱性质示意图^[41]。(a)原理示意图;(b)双色场电场和电流;(c)阶梯上升的电子密度和电离率 $W(t)$;(d)较大频率尺度下的电磁辐射频谱;(e) $n(-16 < n < 16)$ 阶电离事件的贡献以及对应的太赫兹频谱;(f)不同脉宽下的太赫兹频谱

Fig. 5 Mechanism and spectral properties of terahertz generation by ionization two-color pulses^[41]. (a) Schematic diagram; (b) electrical field $E(t)$ and current $J(t)$ of two-color filed; (c) step-wise modulation of free electron density and ionization rate $W(t)$; (d) electromagnetic radiation spectrum on a large frequency scale; (e) the contributions from the n th ionization event for $-16 < n < 16$ and corresponding THz spectra; (f) THz spectrum versus input pulse duration

这三个过程代入到 PIC 中,提出了太赫兹辐射的三步模型。在该模型中,等离子体中产生的太赫兹电磁波可以表示为

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{\partial^2}{c^2 \partial t^2} \right) \delta a = \frac{\omega_p^2}{c^2} \left[\delta a - \langle a_L(x_0, t_0) \rangle \right], \quad (10)$$

式中: c 是光速; δa 是电磁波的速度矢势,太赫兹场强取决于其偏导,即 $E_{\text{THz}} \propto \partial \delta a / \partial t$; a_L 是归一化后的激光矢量势。随后根据此模型,他们分别研究了激光场的强度、脉宽、载波相位、频率比值等对太赫兹辐射的影响^[42-44],研究结果同样说明了单色场和双色场中的激光参数对太赫兹辐射具有影响。

除了上述模型之外,全量子模型^[45-47]、偶极子辐射模型^[48]以及远场太赫兹分析^[49-50]也被研究人员综合运用于太赫兹辐射的理论研究中,这有助于从不同角度对空气等离子体太赫兹辐射机制进行理解。

2.4 双色场辐射源的探索与优化

双色场太赫兹源建立在飞秒激光与物质相互作用的基础之上,其中包含了丰富的物理现象,国内外的相关课题组从多个角度研究了双色场机制中的太赫兹辐射特性,深化了人们对太赫兹辐射源的认识。

2.4.1 光丝的形成机制对太赫兹辐射的影响

在太赫兹辐射的产生过程中,飞秒激光在空气中形成等离子体光丝的过程对太赫兹辐射同样具有重要影响。南开大学的刘伟伟教授团队在此方面展开了一系列重要研究。2018年,Zhao等^[51]提出了一维负折射率的

波导模型(该模型综合考虑了四波混频机制和光电流的作用),研究了太赫兹波的产生与等离子体密度的对应关系,研究结果很好地说明了太赫兹波在等离子体中的传播效应是不能忽略的。2022年,Yu等^[52]在利用 800 nm 和 1600 nm 双色激光产生太赫兹过程中观察到了太赫兹辐射强度与等离子体密度的反对应关系,认为在电离率的计算过程中应考虑波长对电离率的影响,这些结果指出了目前光电流模型存在的一些不足。

2.4.2 不同偏振态组合激光对太赫兹辐射的影响

用圆偏振以及各种偏振态组合的泵浦激光来产生太赫兹辐射,一直是该领域的研究热点之一。传统的双色场方案主要是基于 800 nm 和 400 nm 的线偏振光。在研究气体电离机制过程中,研究人员发现圆偏振激光能够通过隧穿电离有效增强电子能量。受此启发,2016年,国防科技大学的赵增秀、袁建民教授团队的 Meng 等^[27],利用具有相同螺旋形的圆偏振激光,实现了相对于线偏振激光近 5 倍增强的太赫兹能量增强。2022年,该团队的 Tu 等^[53]进一步证实了具有相同螺旋形的圆偏振双色激光能够实现相对于线偏振激光最大 8 倍的太赫兹能量增强。2018年,上海交通大学的盛政明、陈燕萍教授团队^[48]利用圆偏振的基频光和线偏振倍频光的组合,实现了对宽带太赫兹辐射的偏振椭圆率、偏振方向角等参数的独立调控。2022年,该团队的 Wang 等^[54]进一步研究了等离子体丝不同位置处基频光和倍频光的偏振状态,并利用双色场

的不同偏振组合研究了宽带太赫兹辐射中的频谱调谐。此外,二维的光电流模型也日趋完善,并被用于不同激光偏振组合的太赫兹辐射分析^[55-58]。

2.4.3 激光传输和多丝效应的影响

飞秒激光在空气介质中的传输过程以及形成的单丝乃至多丝的形状影响着太赫兹辐射的能量和特性。2013年,Bergé等^[59]利用三维单向脉冲传播方程(UPPE)研究了超高斯脉冲形成的等离子体多丝对太赫兹辐射强度的影响。2021年,深圳大学徐世祥团队的Song等^[60]利用双色激光场产生了两条平行光丝,相比于单条光丝,两条平行光丝的太赫兹辐射强度得到了增强。2022年,该团队的Wang等^[61]基于UPPE数值模拟和带有分数拓扑荷数的双色激光场实现了宽带的带有分数或整数轨道角动量的太赫兹辐射的产生。

2.4.4 泵浦源的优化与拓展

在研究飞秒激光与空气分子相互作用产生太赫兹辐射的过程中,研究人员一直致力于对泵浦光源进行优化与拓展。主要包括以下三方面:

1) 利用预电离的等离子体操控太赫兹辐射的特性^[62-66]。一束单独的泵浦激光在空气中预先产生的等离子体能够影响双色场等离子成丝过程中太赫兹辐射的特性。2018年,Wu等^[64]利用800 nm激光在垂直于双色场的方向上产生了等离子体丝,在此预等离子体的存在下,太赫兹能量的调制深度和偏振可以随着双色场的波长而改变。2022年,Ma等^[66]利用800 nm激光产生的水平方向的预等离子体,实现了太赫兹频谱中高频部分的增强与低频部分的抑制。

2) 使用接连拉丝的等离子体串^[67-70]或级联的等离子体点^[71]。激光场在传输过程中可以通过改变光路中的器件来形成多个级联的等离子串。2014年,Zhang等^[70]通过将透镜倾斜,在空气中得到了接连拉丝的等离子体串。等离子串都可以看作是太赫兹的辐射源,两者相互影响,改变了太赫兹辐射的光谱和偏振性质。2022年,Zhang等^[71]将800 nm和400 nm的激光分路聚焦在空气中,形成了两个级联的等离子体点,通过控制等离子体点的距离,得到了频谱宽度大于100 THz、转换效率在 10^{-3} 量级的太赫兹辐射。

3) 不断优化泵浦脉冲参数(光斑形状^[72-73]、啁啾度^[74-76]等)实现太赫兹辐射的控制与增强。2016年,Kuk等^[73]利用柱透镜来聚焦双色激光场,在空气中形成了二维的等离子片。该方法能够有效避免等离子散焦引起的太赫兹强度饱和,使太赫兹能量的转换效率能够达到 7×10^{-4} ,明显优于使用球面透镜时的效果^[73]。Zhang等^[76]研究了脉冲啁啾对太赫兹辐射的影响,发现使用正啁啾的双色场相对于傅里叶变换极限脉冲得到的太赫兹强度更强,其中的物理机制归因于正啁啾脉冲在时域上与不同频率的激光有着有更好的重合效果。

上述这些研究工作增强了人们对气体太赫兹辐射

的进一步理解,综合考虑上述各方面因素有助于对多色场方案进行优化。

3 基于多色场的太赫兹辐射源

从上述的回顾中可以看出,在气体的太赫兹辐射中,时域不对称的飞秒激光场是激发电子运动和产生太赫兹辐射的重要原因之一,双色场的相对相位在构造不对称光场中起到了关键作用。在目前已报道的双色场方案中,太赫兹辐射场强最高能够达到100 MV/cm,能量转换效率达到了2.36%。是否能够通过在气体太赫兹辐射中引入更多波段的泵浦激光以及配置合理的激光参数来进一步提升太赫兹辐射的强度(相比于传统双色场方案),成为该领域研究的一个重要方向。因此,对于多色场太赫兹方案的探索首先从进一步拓展可用于产生太赫兹辐射的激光波段开始。

3.1 激光波长对太赫兹辐射的影响

研究人员一直致力于开拓可用于激发太赫兹辐射的泵浦激光的波段。2013年,Clerici等^[77]基于光学参量放大器(OPA)输出的近红外激光及其二次谐波,探讨了比通常使用的800 nm基频光波长更长的激光对太赫兹辐射的影响。他们发现,太赫兹辐射的能量随着激光波长的增加而增强,当使用1800 nm激光时,能够得到比800 nm激光高30倍的太赫兹辐射增强。此外,他们还发现太赫兹能量与激光波长大致遵循波长的4.6次方的关系,实验结果如图6所示。

飞秒激光器产生的800 nm激光通过OPA转化为长波长激光的效率是较低的,如果单纯以OPA输出的光作为泵浦光源,再经过BBO倍频,这种双色泵浦激光的能量是相对较弱的。传统的双色场产生机制都基于800 nm基频光及其倍频产生的400 nm二次谐波场(频率比值为1:2)。随着可用激光波段的拓展,研究人员感兴趣的是两种非倍频关系的激光场能否用于产生太赫兹辐射。

2014年,Vvedenskii等^[78]首次从实验和理论上对非倍频关系的双色场产生太赫兹辐射进行了研究。他们将800 nm激光和相对较弱的长波长1600 nm激光共同聚焦在空气中得到了低频率的太赫兹辐射,这是一种基频光与其半频光的组合(频率比值为2:1)。实验装置如图7所示,从激光器发出的800 nm激光通过OPA产生相对较弱的1600 nm激光,这两种激光共同聚焦在空气中产生等离子体。实验中探测到了太赫兹辐射的产生,该研究结果说明混合频率的双色场激光能够有效地产生太赫兹辐射。

在此基础上,该课题组的Kostin等^[79]从理论角度研究了双色场中哪些频率组合相互混频能够产生太赫兹辐射。如图8所示,他们发现在较大的频谱范围内,尽管传统的800 nm+400 nm组合能够产生最优的太赫兹辐射,但其他频率比值,例如2:3或者3:4的频率比值(波长组合为800 nm+533 nm以及800 nm+

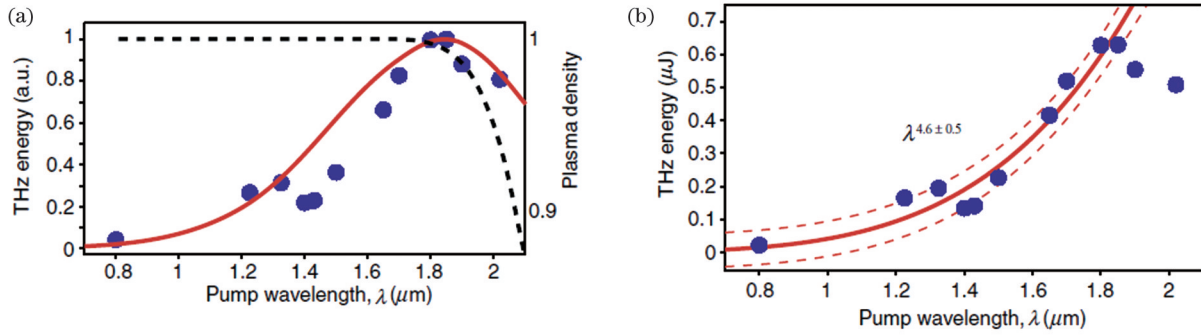


图 6 太赫兹辐射能量和基频激光波长的关系曲线^[77]。(a)基于光电流模型数值模拟以及实验数据得到的太赫兹能量与泵浦激光波长的依赖关系图;(b)当激光泵浦波长在 0.8~2.02 μm 范围内变化时,实验记录的 12 个泵浦波长处的太赫兹能量
Fig. 6 Relation curve of THz energy with fundamental laser pulse wavelength^[77]. (a) Radiated THz energy dependence on the pump laser wavelength obtained by numerical integration of the transverse photocurrent model and experimental data; (b) recorded THz energy for 12 different pump wavelengths when the laser pump wavelength varies from 0.8 to 2.02 μm

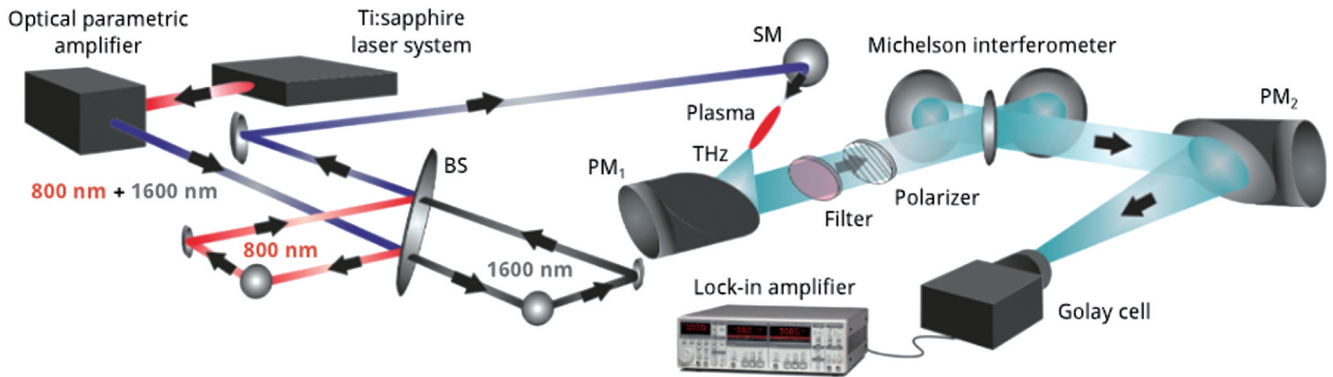


图 7 800 nm 和 1600 nm 的双色激光产生太赫兹辐射的实验装置图^[78]

Fig. 7 Experimental setup of THz generation by the femtosecond 800 nm fundamental- and 1600 nm half-harmonic pulses^[78]

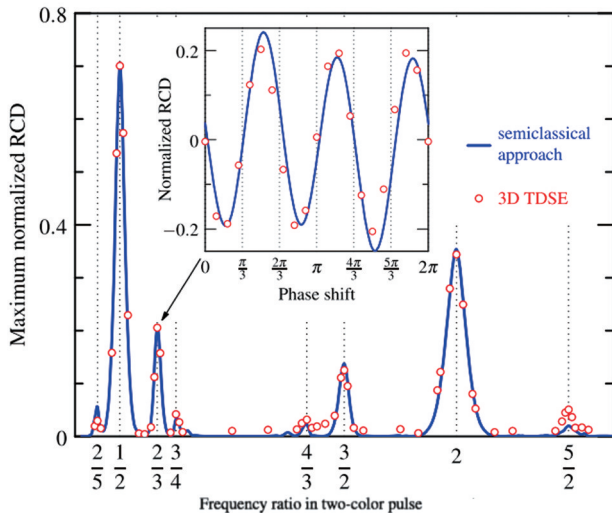


图 8 决定太赫兹辐射强度的残余电流密度和双色场频率比值的依赖关系图^[79]

Fig. 8 Dependence of the zero-frequency (residual) current density (RCD, determining THz radiation intensity) on the frequency ratio of the two-color laser pulse^[79]

1066 nm), 同样能够产生太赫兹辐射。他们将电离率进行泰勒展开, 最终得到了电子电流的强度取决于不同频率激光的贡献这一结论。当频率比值的数字之和为奇数时, 能够产生相当强度的电子电流, 从而能够辐

射太赫兹波。

除此之外, 研究人员也一直致力于研究长波长对太赫兹辐射的影响以及利用中红外激光来产生太赫兹辐射^[80-85], 这些研究成果进一步拓展了可用于太赫兹辐射的泵浦激光波段的范围和频率组合, 为多色场方案的提出奠定了基础。

3.2 多色场产生太赫兹理论方案的提出

2015年, de Alaiza Martinez 等^[86]在理论上提出了一种新颖的多色场方案。他们以 1600 nm 激光作为基频光, 以其倍频 800 nm 激光、三倍频 533 nm 和四倍频 400 nm 激光等构造三色场、四色场乃至多色场。在该方案中, 倍频激光的强度依次递减, 相对相位以 $\pm\pi/2$ 交替变化。如图 9(b) 所示, 当参与激光的数目达到 10 个以上时, 激光场的波形将展现出近似于锯齿的形状, 因此该多色场又被称为锯齿波。其表达式为

$$E(t) = \sum_{k=1}^N E_k(t) = \sum_{k=1}^N \epsilon_k(t) a_k \cos(k\omega_0 t + \phi_k), \quad (11)$$

式中: $\epsilon_k(t)$ 代表光场的包络; $a_k = 1/k$ 和 $\phi_k = (-1)^k \pi/2$ 分别是每种频率光场的相对强度和相对相位。将此锯齿波表达式代入光电流模型中, 数值模拟结果表明, 太赫兹辐射的强度相比同等激光能量或电离度的双色场大幅提高, 能量的转换效率能够达到 2%。de Alaiza

Martinez 进一步说明了其中的物理机制。在之前的双色场方案中,激光峰值处能够产生最多的自由电子,但是在这些时刻,电子的漂移速度并非最大。该工作构造的多色场锯齿波在时域方面具有极大的不对称性,能够在

激光场的峰值处产生最大的漂移速度,如图 9(b)所示。同样,由电子运动轨迹的相空间图可以看出,最大的动量值出现在光强的最大峰值处。所以,锯齿波能够产生最大的电子电流,从而提高了太赫兹辐射的强度。

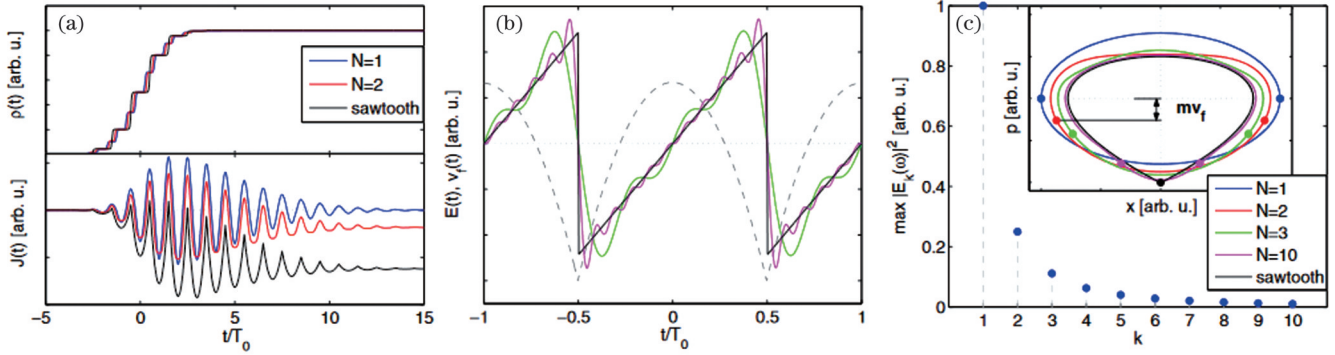


图 9 锯齿波太赫兹辐射物理机制示意图^[86]。(a)单色场、双色场和锯齿波的电子密度以及电流密度随时间延长逐渐增加;(b)锯齿波的波形在光场极值处具有最大的漂移速度;(c)锯齿波的光谱成分,其中包含了多个强度依次递减的谐波(插图为多色场对应的自由电子在相空间的轨迹)

Fig. 9 Schematic of physical mechanism for the sawtooth THz radiation^[86]. (a) Stepwise increase of the electron density and current density for a one-color, two-color, and a sawtooth pulse; (b) sawtooth waveform having the maximal drift velocity at the extrema of the light field; (c) spectrum of the sawtooth waveform containing all harmonics with intensities decreasing (the inset shows the trajectories of free electrons in phase space for an increasing numbers of colors)

多色场锯齿波所需的泵浦激光的数目很多,这在目前的实验条件下是难以达到的。随后的一些理论和实验工作主要聚焦在实验上更具可行性的三色光场上。

2017年, Lu等^[87]提出了一种比较接近实验条件的锯齿波三色场的激光配置方案,并将其用于产生太赫兹辐射。其核心是以双色场的参数形式固定其中的双色光场,然后通过调谐第三色光的波长,实现太赫兹辐射的增强与控制。其中 $\delta\omega_1$ 、 $\delta\omega_2$ 和 $\delta\omega_3$ 用来表示三种波长激光的调谐量。数值模拟结果表明,当调谐第三种波长激光的频率时,太赫兹频谱中会出现高频部分,因而整个太赫兹辐射的能量能够保持不变,如图 10 所示。并且,如果适当地调谐另两种波长激光的频率,

在特定的调谐频率下,太赫兹辐射的能量还能进一步增强。该理论研究提供了一种思路,即在双色场的基础上引入更长波段的激光组成三色场可以提升太赫兹辐射的强度。该方案在实验上具有可行性。

2017年, Zhang等^[88]基于遗传算法研究了各参量相对独立的三色场的太赫兹辐射强度。通过在整个参量空间中寻找最优的激光参数,算法给出了优化后的三色场激光的激光强度比值 α 、激光波长 λ 以及所能调谐的太赫兹的中心频率 Ω ,如表 1 所示。最终,太赫兹辐射的强度相比于相同强度条件下的双色场提高了一个数量级。

表 1 产生太赫兹辐射的最优的三色激光场的参数^[88]

Table 1 The optimized three-color laser field parameters for the THz generation^[88]

| Ω / THz | α_{21} | α_{31} | λ_2 / nm | λ_3 / nm |
|----------------|---------------|---------------|------------------|------------------|
| 5 | 0.6488 | 0.5500 | 403.0067 | 266.6921 |
| 10 | 0.6413 | 0.5395 | 405.4439 | 266.6982 |
| 15 | 0.6344 | 0.5361 | 408.1191 | 266.6005 |
| 20 | 0.6399 | 0.5500 | 411.0337 | 266.7989 |
| 25 | 0.6432 | 0.5500 | 413.8096 | 266.6707 |
| 30 | 0.6343 | 0.5148 | 416.7639 | 266.8020 |

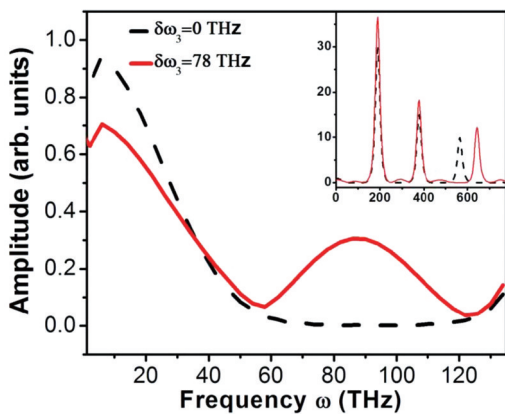


图 10 谐波和非谐波(其中三次谐波成分频率失谐)三色光场对应的太赫兹辐射频谱图^[87]

Fig. 10 THz radiation spectrum for the harmonic and nonharmonic three-color laser pulse with detuned third harmonic frequency^[87]

上述理论研究工作都表明,通过合理地配置三色场激光,太赫兹辐射的强度能够得到进一步提升,这为进一步的实验探索奠定了理论基础。

3.3 光场相位未锁定的多色场实验研究

多色光场方面的实验工作首先是利用 OPA 产生的近红外激光开展的。2018年, Bagley等^[89]将 800 nm

的飞秒激光入射到 OPA, 产生了下转化的近红外长波长的信号光和闲频光, 这实际上是一种 800 nm 激光 + 信号光 + 闲频光的三色场配置。实验装置如图 11 所

示, 将 OPA 输出的三种光聚焦在空气中, 实验上最终得到了频率范围在 0~6 THz 以内、强度为 200 kV/cm 的太赫兹辐射。

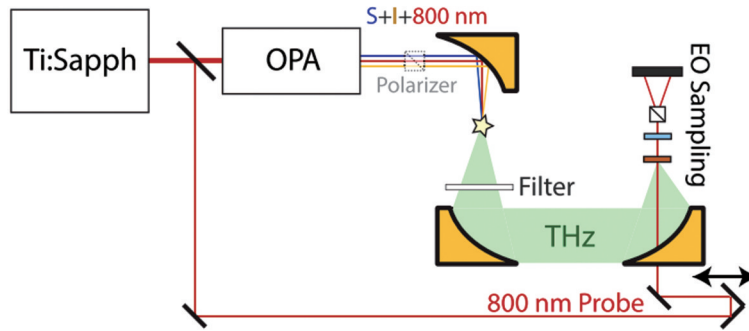


图 11 基于 OPA 的三色场实验装置图^[89]

Fig. 11 Experimental setup for the incommensurate three-color laser field based on OPA^[89]

在 Bagley 等的实验中, 三色激光场会有不同的偏振状态, 而且其相对相位也未被控制。他们在不同情况下对比了三色场与传统双色场的太赫兹辐射强度, 如图 12 所示, 三色场的太赫兹波强度相对于双色场得到了明显增强。

2019 年, Vaičaitis 等^[90]设计了一种基于 OPA 谐波三色场装置, 实验装置如图 13 所示。首先将从激光器发出的激光分成两路, 其中一路通过 OPA 产生信号光和闲频光; 再将三束光通过二向色滤光片叠加起来并通过延迟线最终把三束光共线会聚, 聚焦在空气中产生 1 cm 长的光丝, 同时向外产生太赫兹辐射。

从图 14 所示的实验结果可以看出, 通过调整信号光和闲频光的波长, 能够不断增强太赫兹强度。Vaičaitis 等进一步对比了这种 800 nm 激光 + 信号光 + 闲频光的三色场配置和 800 nm 激光 + 信号光的双色场配置产生的太赫兹辐射强度的异同。可以看出, 三

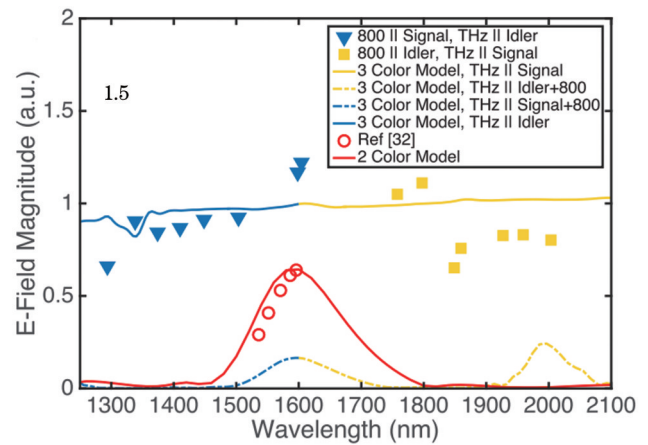


图 12 太赫兹波的峰值强度与信号光、闲频光波长的关系图^[89]
Fig. 12 THz peak to peak electric field strength as a function of signal wavelength and idler wavelength^[89]

色场太赫兹辐射的强度相比双色场能够提升一个数量级。

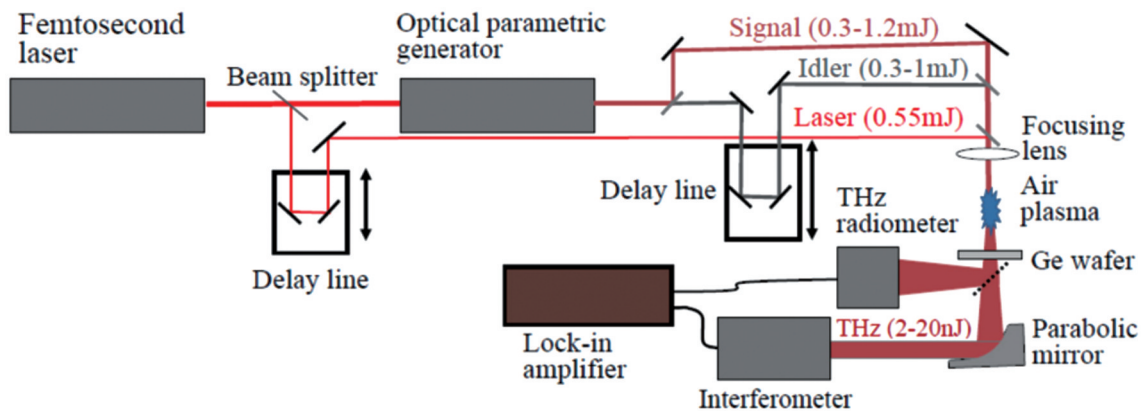


图 13 光场相位未锁定的三色场实验装置^[90]

Fig. 13 Experimental setup for three-color laser excitation without phase control^[90]

然而, 基于 OPA 的三色场装置存在明显的缺陷。从激光器发出的泵浦光的主要能量通过 OPA 能量下转换产生近红外波长激光, 转换效率比较低。这会导致用

于电离空气的光强不够高, 从而使得三色场的增强是在低光场强度条件下实现的(相对于双色场的增强效果)。更重要的是, 信号光、闲频光和泵浦光三者之间的相对

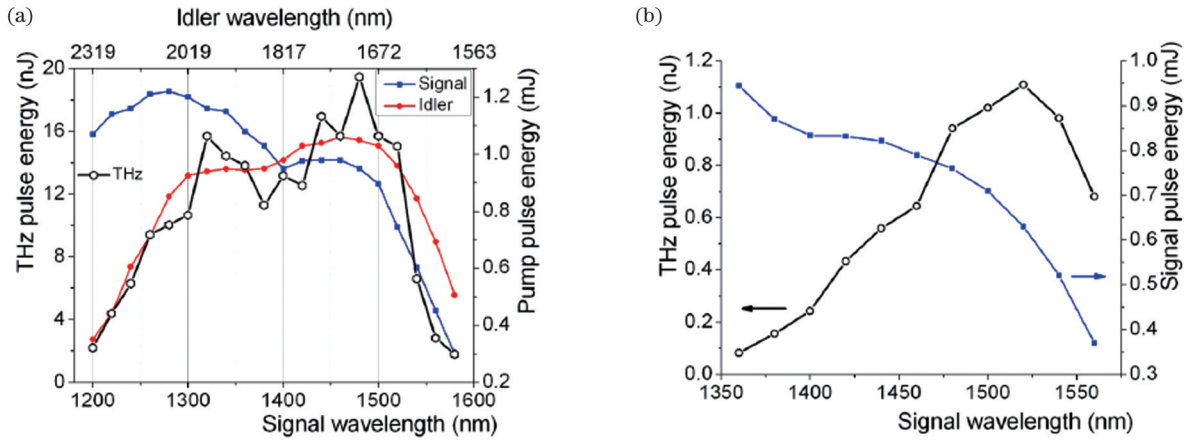


图 14 相位未锁定三色场太赫兹辐射能量^[90]。(a)三色场太赫兹能量和信号光、闲频光波长的关系图；(b)双色场(泵浦光与信号光)太赫兹能量与波长的关系

Fig. 14 THz energy of three-color laser pulses without phase control^[90]. (a) Dependence of THz energy of three-color laser pulses on the wavelengths of the signal and idler pulses; (b) dependence of the THz pulse energy of the two-color driver pulses (laser and signal pulses) on wavelength

相位无法精确控制并加以改变,该相位因对实验室中的振动等比较敏感而很难保持不变,而上述基于三色场的实验结果都是三色场相对相位随机平均后的结果。这些都会影响对多色场太赫兹辐射物理机制的探索,从而限制了太赫兹辐射强度的进一步提升和优化。

3.4 光场相位锁定的多色场实验研究

2020年,Liu等^[91]提出了一种通过共线谐波产生过程实现三色场的实验方案,实验装置如图15所示。

飞秒激光器产生的800 nm泵浦光依次通过倍频、和频BBO晶体,分别产生二倍频光和三倍频光。此三色激光在同一条光路上,通过调整光路中光楔的厚度以及第二块BBO到焦点的距离,实现了三色光相对相位的灵活控制,并且其控制精度能够达到阿秒量级。通过分析光路中的元件引起的相位变化,得出产生最优太赫兹辐射的三色激光场本质上具有锯齿波形式。其光场可以表示为

$$E(t) = \exp\left[\frac{-2\ln(2t^2)}{\tau^2}\right] \left[E_{800} \sin(\omega_0 t) + E_{400} \sin(2\omega_0 t + \pi + \Delta\varphi) + E_{266} \sin(3\omega_0 t + \Delta\varphi + \Delta\gamma) \right], \quad (12)$$

式中: E_{800} 、 E_{400} 和 E_{266} 分别表示三种光场的电场强度; $\Delta\varphi$ 和 $\Delta\gamma$ 分别代表400 nm和266 nm光场的相对相位变化。基于该共线相位可控的三色激光场,在较高的激光功率下,整体的太赫兹辐射强度相比没有三倍频光参与时提高了3.24倍。

在该装置中,通过改变光楔的厚度以及改变第二块BBO晶体到焦点的距离,可以实现太赫兹辐射强度的灵活控制。如图16所示,800 nm和400 nm光场的相对相位 $\Delta\varphi$ 可以通过调节光楔的厚度 Δd 来改变 $[\Delta\varphi = 2\pi(n_{800} - n_{400})\Delta d/\lambda_{400}]$,266 nm光场的相对相位 $\Delta\gamma$ 可以通过移动第二块BBO到焦点的距离来改变。可以看出,使用此共线的三色场实验装置,三色场相对相位控制精度可以达到阿秒量级,实现了太赫兹辐射强度的精确控制,这有别于前述基于OPA的三色场方案(不能有效锁定光场相位)。

2022年,Wang等^[92]利用该实验装置,进一步研究了强激光与空气相互作用过程中电离率的控制。实验装置如图17所示。他们在三色场形成的等离子体光丝的不同位置,分别测量了不同波段的荧光信号随三

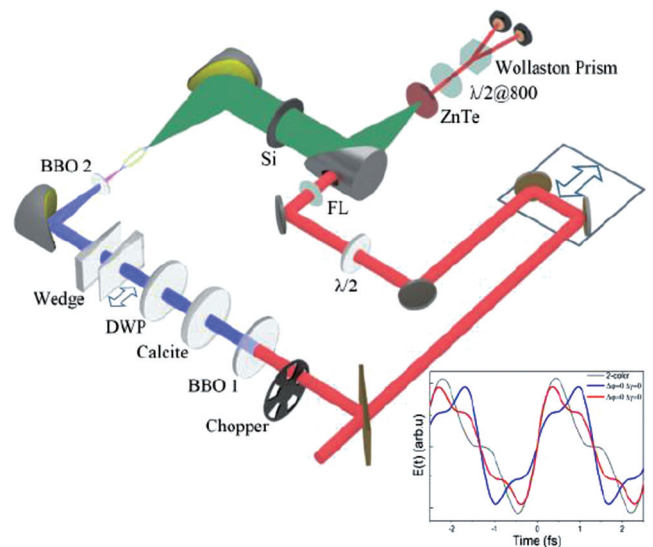


图 15 相位锁定三色场实验装置示意图以及三色光场时域波形示意图^[91]

Fig. 15 Experimental setup for three-color laser field with phase control and time-domain waveform of the three-color laser field^[91]

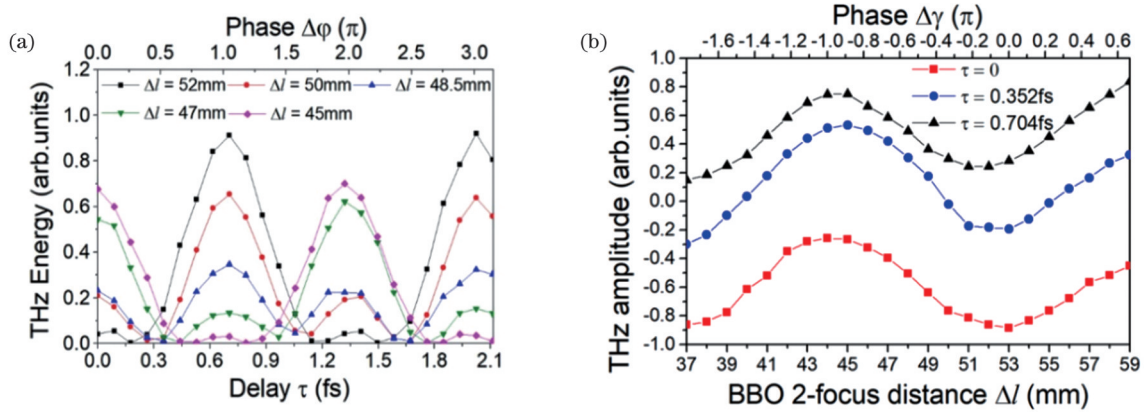


图 16 三色场相对相位对太赫兹辐射的影响^[91]。(a)太赫兹能量随 800 nm 和 400 nm 光场相对相位的变化图；(b)太赫兹幅值随 266 nm 光场相对相位的变化图

Fig. 16 Effects of relative phase of three-color laser field on THz radiation^[91]. (a) Energy of THz pulse as a function of the relative phase of 800 and 400 nm laser fields; (b) amplitude of THz pulse as a function of the relative phase of 266 nm laser field

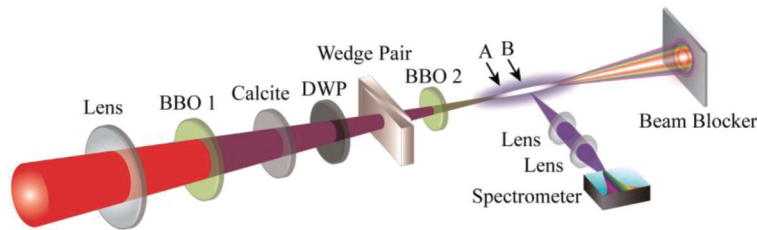


图 17 三色场电离控制实验装置示意图^[92]

Fig. 17 Schematic experimental setup for the ionization control of three-color laser pulse^[92]

色场相对强度和相位的变化,以监测气体分子的电离率。

研究发现,通过改变三色场的相对相位,能够有效控制气体分子的电离率。从图 18 可以看出,在等离子

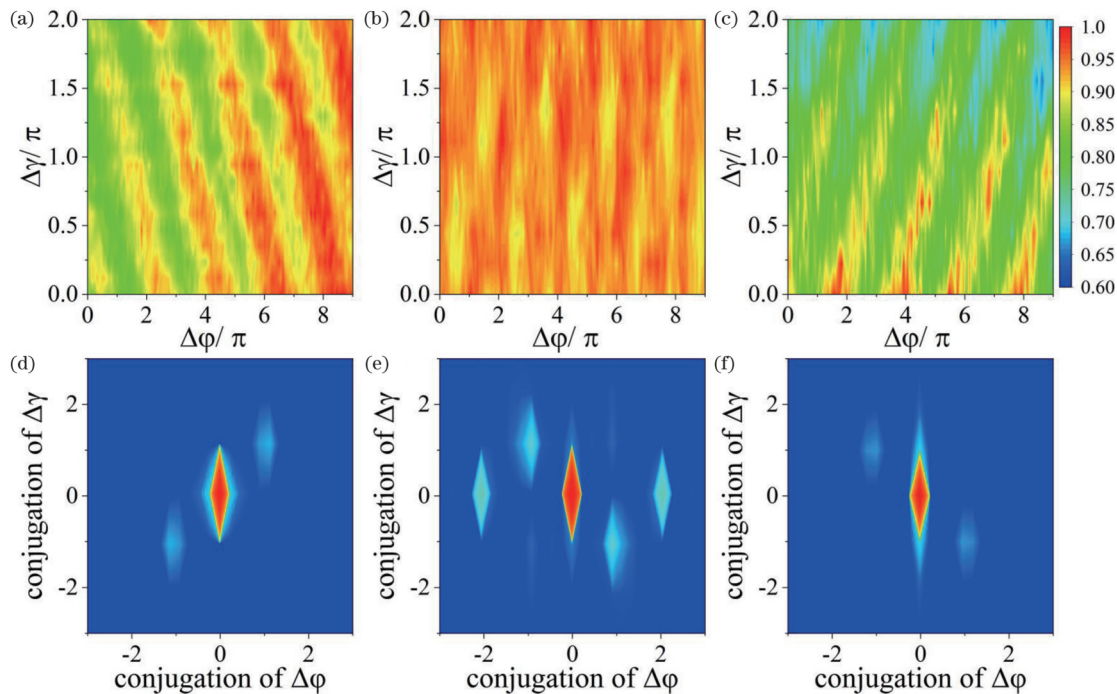


图 18 三色场相对相位对荧光信号的影响^[92]。(a)~(c)在等离子体光丝的不同位置处,荧光信号强度与三色场相对相位的关系；(d)~(f)实验荧光信号的二维傅里叶变换结果

Fig. 18 Effects of relative phase of three-color laser pulses on fluorescence signal^[92]. (a)–(c) Dependence of the fluorescence signal intensity on the relative phases at different positions of plasma filament; (d)–(f) normalized 2D Fourier transform of the experimental signals

体光丝的不同部位,通过控制三色场的相对相位 $\Delta\varphi$ 和 $\Delta\gamma$,荧光图谱表现为左倾条纹、棋盘和右倾条纹。对荧光图谱进行二维傅里叶变化后可以发现,不同的电离情况来源于不同通道之间的竞争。通过控制相位的方式可以调控电离通道之间的竞争,最终影响气体电离后的自由电子密度。电离现象是研究高次谐波产生、微纳加工制造、激光成丝传输、激光诱导闪电等强场物理现象的基础。因此,利用三色场可以提供更多的控制变量来实现相干控制。

4 结束语

本文简要回顾了多色激光场在驱动空气等离子体产生太赫兹辐射方面的研究进展,可以看出,构造不对称的激光场是该方向研究的重要历史脉络和前进方向之一,产生的强太赫兹辐射预期能够应用到反铁磁材料的物态控制、大分子振转能级的操控以及医学、国防军事等领域。

从双色场方案的探索中可以看出,空气中气体分子的电离机制、光丝的形成、太赫兹波和激光场的传输、泵浦光偏振组合等都深刻地影响着太赫兹辐射的性质和效率。目前,多色场的实验方案仍存在一些明显的局限性:从 OPA 引出的近红外激光因为多色光场的相位不能控制,难以构造激光参量可灵活调控的多色场;共线相位可控三色场方案可以灵活控制光场相位,但三色场的偏振态又难以自由选择,从而限制了其性能的进一步提升。因此,探索多色光场偏振、相对相位和强度比可以灵活调控的实验方案对于探索多色场驱动气体等离子体产生太赫兹辐射的机制以及太赫兹辐射的性能提升具有重要意义。

可以相信,对多色场激光方案进行进一步优化和探索,将能够进一步提升太赫兹辐射的强度,使多色场方法成为操控微观世界的有力工具,进而促进其在相关领域的科学研究及应用。

参 考 文 献

- [1] 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.
- [2] Salén P, Basini M, Bonetti S, et al. Matter manipulation with extreme terahertz light: progress in the enabling THz technology [J]. *Physics Reports*, 2019, 836/837: 1-74.
- [3] Han P Y, Cho G C, Zhang X C. Time-domain transillumination of biological tissues with terahertz pulses[J]. *Optics Letters*, 2000, 25(4): 242-244.
- [4] Henry S C, Zurk L M, Schecklman S, et al. Three-dimensional broadband terahertz synthetic aperture imaging[J]. *Optical Engineering*, 2012, 51(9): 091603.
- [5] 孙一健, 王继芬. 太赫兹时域光谱技术在食品、药品和环境领域中的应用研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2022, 59(16): 1600003.
Sun Y J, Wang J F. Research progress of terahertz time domain spectroscopy in food, medicine and environment[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2022, 59(16): 1600003.
- [6] Pickwee E, Wallace V P. Biomedical applications of terahertz technology[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2006, 39(17): R301.
- [7] Yang X, Zhao X, Yang K, et al. Biomedical applications of terahertz spectroscopy and imaging[J]. *Trends in Biotechnology*, 2016, 34(10): 810-824.
- [8] 王与焯, 李海滨, 王泽龙, 等. 大鼠冲击性脑创伤的太赫兹波成像检测[J]. *光学学报*, 2022, 42(10): 1017001.
Wang Y Y, Li H B, Wang Z L, et al. Terahertz wave imaging detection of blast-induced traumatic brain injury of rats[J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(10): 1017001.
- [9] 吴晓君, 任泽君, 孔德胤, 等. 铍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.
- [10] 戴建明, 张祎帆, 陈宇轩, 等. 液态水辐射源产生太赫兹波的研究进展[J]. *中国激光*, 2021, 48(19): 1914001.
Dai J M, Zhang Y F, Chen Y X, et al. Research progress on terahertz wave generation from liquid water[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(19): 1914001.
- [11] Sun W F, Wang X K, Zhang Y. Terahertz generation from laser-induced plasma[J]. *Opto-Electronic Science*, 2022, 1(8): 220003.
- [12] Matsubara E, Nagai M, Ashida M. Ultrabroadband coherent electric field from far infrared to 200 THz using air plasma induced by 10 fs pulses[J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 101(1): 011105.
- [13] Dreyhaupt A, Winnerl S, Dekorsy T, et al. High-intensity terahertz radiation from a microstructured large-area photoconductor[J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 86(12): 121114.
- [14] Beck M, Schäfer H, Klatt G, et al. Impulsive terahertz radiation with high electric fields from an amplifier-driven large-area photoconductive antenna[J]. *Optics Express*, 2010, 18(9): 9251-9257.
- [15] Nahata A, Weling A S, Heinz T F. A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling[J]. *Applied Physics Letters*, 1996, 69(16): 2321-2323.
- [16] Blanchard F, Schmidt B E, Ropagnol X, et al. Terahertz pulse generation from bulk GaAs by a tilted-pulse-front excitation at 1.8 μm [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 105(24): 241106.
- [17] Zhang D W, Lü Z H, Meng C, et al. Synchronizing terahertz wave generation with attosecond bursts[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 109(24): 243002.
- [18] Dai H M, Liu J S. Phase dependence of the generation of terahertz waves from two-color laser-induced gas plasma[J]. *Journal of Optics*, 2011, 13(5): 055201.
- [19] Li M, Li W X, Shi Y, et al. Verification of the physical mechanism of THz generation by dual-color ultrashort laser pulses [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, 101(16): 161104.
- [20] Wang T J, Chen Y P, Marceau C, et al. High energy terahertz emission from two-color laser-induced filamentation in air with pump pulse duration control[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 95(13): 131108.
- [21] Lu C H, He T, Zhang L Q, et al. Effect of two-color laser pulse duration on intense terahertz generation at different laser intensities [J]. *Physical Review A*, 2015, 92(6): 063850.
- [22] Oh T I, You Y S, Jhaji N, et al. Intense terahertz generation in two-color laser filamentation: energy scaling with terawatt laser systems[J]. *New Journal of Physics*, 2013, 15(7): 075002.
- [23] Du H W, Chen M, Sheng Z M, et al. Numerical studies on terahertz radiation generated from two-color laser pulse interaction with gas targets[J]. *Laser and Particle Beams*, 2011, 29(4): 447-452.
- [24] Zhang L, Wang G L, Zhou X X. Optimized two- and three-colour laser pulses for the intense terahertz wave generation[J]. *Journal of Modern Optics*, 2016, 63(21): 2159-2165.
- [25] Lu C H, Zhang S A, Yao Y H, et al. Effect of two-color laser

- pulse intensity ratio on intense terahertz generation[J]. RSC Advances, 2015, 5(2): 1485-1490.
- [26] Dai J M, Karpowicz N, Zhang X C. Coherent polarization control of terahertz waves generated from two-color laser-induced gas plasma[J]. Physical Review Letters, 2009, 103(2): 023001.
- [27] Meng C, Chen W B, Wang X W, et al. Enhancement of terahertz radiation by using circularly polarized two-color laser fields[J]. Applied Physics Letters, 2016, 109(13): 131105.
- [28] Minami Y, Kurihara T, Yamaguchi K, et al. High-power THz wave generation in plasma induced by polarization adjusted two-color laser pulses[J]. Applied Physics Letters, 2013, 102(4): 041105.
- [29] Hamster H. Generation of sub-picosecond terahertz radiation by laser-produced plasmas[D]. Berkeley: University of California, Berkeley, 1993.
- [30] Cook D J, Hochstrasser R M. Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air[J]. Optics Letters, 2000, 25(16): 1210-1212.
- [31] D'Amico C, Houard A, Franco M, et al. Conical forward THz emission from femtosecond-laser-beam filamentation in air[J]. Physical Review Letters, 2007, 98(23): 235002.
- [32] Houard A, Liu Y, Prade B, et al. Strong enhancement of terahertz radiation from laser filaments in air by a static electric field[J]. Physical Review Letters, 2008, 100(25): 255006.
- [33] Liu Y, Houard A, Prade B, et al. Terahertz radiation source in air based on bifilamentation of femtosecond laser pulses[J]. Physical Review Letters, 2007, 99(13): 135002.
- [34] Kress M, Löffler T, Eden S, et al. Terahertz-pulse generation by photoionization of air with laser pulses composed of both fundamental and second-harmonic waves[J]. Optics Letters, 2004, 29(10): 1120-1122.
- [35] Kim K Y, Glowia J H, Taylor A J, et al. Terahertz emission from ultrafast ionizing air in symmetry-broken laser fields[J]. Optics Express, 2007, 15(8): 4577-4584.
- [36] Kim K Y, Taylor A J, Glowia J H, et al. Coherent control of terahertz supercontinuum generation in ultrafast laser-gas interactions[J]. Nature Photonics, 2008, 2(10): 605-609.
- [37] Kim K Y. Generation of coherent terahertz radiation in ultrafast laser-gas interactions[J]. Physics of Plasmas, 2009, 16(5): 056706.
- [38] Babushkin I, Kuehn W, Köhler C, et al. Ultrafast spatiotemporal dynamics of terahertz generation by ionizing two-color femtosecond pulses in gases[J]. Physical Review Letters, 2010, 105(5): 053903.
- [39] Cabrera-Granado E, Chen Y, Babushkin I, et al. Spectral self-action of THz emission from ionizing two-color laser pulses in gases[J]. New Journal of Physics, 2015, 17(2): 023060.
- [40] Roskos H G, Thomson M D, Kieß M, et al. Broadband THz emission from gas plasmas induced by femtosecond optical pulses: from fundamentals to applications[J]. Laser & Photonics Reviews, 2007, 1(4): 349-368.
- [41] Babushkin I, Skupin S, Husakou A, et al. Tailoring terahertz radiation by controlling tunnel photoionization events in gases[J]. New Journal of Physics, 2011, 13(12): 123029.
- [42] Wang W M, Sheng Z M, Wu H C, et al. Strong terahertz pulse generation by chirped laser pulses in tenuous gases[J]. Optics Express, 2008, 16(21): 16999-17006.
- [43] Wang W M, Li Y T, Sheng Z M, et al. Terahertz radiation by two-color lasers due to the field ionization of gases[J]. Physical Review E, 2013, 87(3): 033108.
- [44] Wang W M, Sheng Z M, Li Y T, et al. Terahertz emission driven by two-color laser pulses at various frequency ratios[J]. Physical Review A, 2017, 96(2): 023844.
- [45] Karpowicz N, Zhang X C. Coherent terahertz echo of tunnel ionization in gases[J]. Physical Review Letters, 2009, 102(9): 093001.
- [46] Silaev A A, Vvedenskii N V. Residual-current excitation in plasmas produced by few-cycle laser pulses[J]. Physical Review Letters, 2009, 102(11): 115005.
- [47] Silaev A A, Ryabikin M Y, Vvedenskii N V. Strong-field phenomena caused by ultrashort laser pulses: effective one- and two-dimensional quantum-mechanical descriptions[J]. Physical Review A, 2010, 82(3): 033416.
- [48] Zhang Z L, Chen Y P, Cui S, et al. Manipulation of polarizations for broadband terahertz waves emitted from laser plasma filaments[J]. Nature Photonics, 2018, 12(9): 554-559.
- [49] You Y S, Oh T I, Kim K Y. Off-axis phase-matched terahertz emission from two-color laser-induced plasma filaments[J]. Physical Review Letters, 2012, 109(18): 183902.
- [50] Xiao H C, Wang S F, Peng Y, et al. Enhancing terahertz radiation from femtosecond laser filaments using local gas density modulation[J]. Physical Review A, 2021, 104(1): 013517.
- [51] Zhao J Y, Liu W W, Li S C, et al. Clue to a thorough understanding of terahertz pulse generation by femtosecond laser filamentation[J]. Photonics Research, 2018, 6(4): 296-306.
- [52] Yu Z Q, Sun L, Zhang N, et al. Anti-correlated plasma and THz pulse generation during two-color laser filamentation in air[J]. Ultrafast Science, 2022, 2022: 9853053.
- [53] Tu Y Y, Meng C, Sun X, et al. Enhancement of terahertz radiation from a filament by using circularly polarized two-color laser fields[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2022, 39(3): A83-A88.
- [54] Wang L Z, Zhang Z L, Xia T H, et al. Frequency tuning for broadband terahertz emission from two-color laser-induced air plasma[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2022, 39(3): A68-A74.
- [55] Tailliez C, Stathopoulos A, Skupin S, et al. Terahertz pulse generation by two-color laser fields with circular polarization[J]. New Journal of Physics, 2020, 22(10): 103038.
- [56] Song Q Y, Lin Q G, Wang H G, et al. Efficient nearly-circularly-polarized terahertz generation from an air plasma pumped by collinear and circularly polarized two-color laser fields[J]. Physical Review A, 2020, 102(2): 023506.
- [57] Oh T I, You Y S, Kim K Y. Two-dimensional plasma current and optimized terahertz generation in two-color photoionization[J]. Optics Express, 2012, 20(18): 19778-19786.
- [58] Wang G L, Qi H X, Li Y N, et al. Polarization-controlled terahertz generation by bicircular longer-wavelength laser fields[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2022, 39(5): 1370-1377.
- [59] Bergé L, Skupin S, Köhler C, et al. 3D numerical simulations of THz generation by two-color laser filaments[J]. Physical Review Letters, 2013, 110(7): 073901.
- [60] Song Q Y, Yuan X M, Hu S S, et al. Enhance terahertz radiation and its polarization-control with two parallel filaments pumped by two-color femtosecond laser fields[J]. Optics Express, 2021, 29(14): 22659-22666.
- [61] Wang H G, Xu S X, Chen Y Y, et al. Generation of terahertz radiation with fractional or integer OAMs from a fractional-order vortex two-color field[J]. New Journal of Physics, 2022, 24(8): 083027.
- [62] Das J, Yamaguchi M. Terahertz wave excitation from preexisting air plasma[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2013, 30(6): 1595-1600.
- [63] Vaicaitis V, Ivanov M, Adomavičius K, et al. Influence of laser-preformed plasma on THz wave generation in air by bichromatic laser pulses[J]. Laser Physics, 2018, 28(9): 095402.
- [64] Wu T, Dong L Q, Huang S X, et al. Excitation-wavelength-dependent terahertz wave modulation via preformed air plasma[J]. Applied Physics Letters, 2018, 112(17): 171106.
- [65] Sorenson S A, Moss C D, Kauwe S K, et al. Enhancing terahertz generation from a two-color plasma using optical parametric amplifier waste light[J]. Applied Physics Letters, 2019, 114(1): 011106.
- [66] Ma D N, Dong L Q, Zhang M H, et al. Terahertz wave generation from two-color laser-excited air plasma modulated by bichromatic laser fields[J]. IEEE Transactions on Terahertz

- Science and Technology, 2022, 12(3): 267-273.
- [67] Manceau J M, Massaoui M, Tzortzakis S. Strong terahertz emission enhancement via femtosecond laser filament concatenation in air[J]. Optics Letters, 2010, 35(14): 2424-2426.
- [68] Zhang Z L, Chen Y P, Chen M, et al. Controllable terahertz radiation from a linear-dipole array formed by a two-color laser filament in air[J]. Physical Review Letters, 2016, 117(24): 243901.
- [69] He B Q, Nan J Y, Li M, et al. Terahertz modulation induced by filament interaction[J]. Optics Letters, 2017, 42(5): 967-970.
- [70] Zhang Z L, Chen Y P, Yang L, et al. Dual-frequency terahertz emission from splitting filaments induced by lens tilting in air[J]. Applied Physics Letters, 2014, 105(10): 101110.
- [71] Zhang Y Z, Jiao Z H, He T, et al. Intensity-surged and bandwidth-extended terahertz radiation in two-foci cascading plasmas[J]. Optics Letters, 2022, 47(15): 3816-3819.
- [72] Vaičaitis V, Tamulienė V. Beam-distortion enhanced terahertz radiation generation in air[J]. Results in Physics, 2022, 42: 105985.
- [73] 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.
- [74] Moradi S, Ganjovi A, Shojaei F, et al. Parametric study of broadband terahertz radiation generation based on interaction of two-color ultra-short laser pulses[J]. Physics of Plasmas, 2015, 22(4): 043108.
- [75] Nguyen A, de Alaiza Martínez P G, Thiele I, et al. THz field engineering in two-color femtosecond filaments using chirped and delayed laser pulses[J]. New Journal of Physics, 2018, 20(3): 033026.
- [76] Zhang Z, Panov N, Andreeva V, et al. Optimum chirp for efficient terahertz generation from two-color femtosecond pulses in air[J]. Applied Physics Letters, 2018, 113(24): 241103.
- [77] 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.
- [78] Vvedenskii N V, Korytin A I, Kostin V A, et al. Two-color laser-plasma generation of terahertz radiation using a frequency-tunable half harmonic of a femtosecond pulse[J]. Physical Review Letters, 2014, 112(5): 055004.
- [79] Kostin V A, Laryushin I D, Silaev A A, et al. Ionization-induced multiwave mixing: terahertz generation with two-color laser pulses of various frequency ratios[J]. Physical Review Letters, 2016, 117(3): 035003.
- [80] Nguyen A, de Alaiza Martínez P G, Thiele I, et al. Broadband terahertz radiation from two-color mid- and far-infrared laser filaments in air[J]. Physical Review A, 2018, 97(6): 063839.
- [81] Fedorov V Y, Tzortzakis S. Extreme THz fields from two-color filamentation of midinfrared laser pulses[J]. Physical Review A, 2018, 97(6): 063842.
- [82] Fedorov V Y, Tzortzakis S. Optimal wavelength for two-color filamentation-induced terahertz sources[J]. Optics Express, 2018, 26(24): 31150-31159.
- [83] 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.
- [84] Fedorov V Y, Tzortzakis S. Powerful terahertz waves from long-wavelength infrared laser filaments[J]. Light: Science & Applications, 2020, 9: 186.
- [85] Jang D, Schwartz R M, Woodbury D, et al. Efficient terahertz and Brunel harmonic generation from air plasma via mid-infrared coherent control[J]. Optica, 2019, 6(10): 1338-1341.
- [86] de Alaiza Martínez P G, Babushkin I, Bergé L, et al. Boosting terahertz generation in laser-field ionized gases using a sawtooth wave shape[J]. Physical Review Letters, 2015, 114(18): 183901.
- [87] Lu C H, Zhang C Y, Zhang L Q, et al. Modulation of terahertz-spectrum generation from an air plasma by tunable three-color laser pulses[J]. Physical Review A, 2017, 96(5): 053402.
- [88] Zhang L, Wang G L, Zhao S F, et al. Controlling of strong tunable THz emission with optimal incommensurate multi-color laser field[J]. Physics of Plasmas, 2017, 24(2): 023116.
- [89] Bagley J D, Moss C D, Sorenson S A, et al. Laser-induced plasma generation of terahertz radiation using three incommensurate wavelengths[J]. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 2018, 51(14): 144004.
- [90] Vaičaitis V, Balachninaitė O, Morgner U, et al. Terahertz radiation generation by three-color laser pulses in air filament[J]. Journal of Applied Physics, 2019, 125(17): 173103.
- [91] Liu S J, Fan Z Q, Lu C H, et al. Coherent control of boosted terahertz radiation from air plasma pumped by a femtosecond three-color sawtooth field[J]. Physical Review A, 2020, 102(6): 063522.
- [92] Wang S X, Lu C H, Fan Z Q, et al. Coherently controlled ionization of gases by three-color femtosecond laser pulses[J]. Physical Review A, 2022, 105(2): 023529.

Research Progress on Intense and Broadband Terahertz Radiation Generation with Multi-Color Laser Field

Lu Chenhui¹, Zhuang Longzhen¹, Zhang Zhiwen², Liu Zefu², Liu Yi^{2*}

¹*School of Mechanical and Automotive Engineering, Shanghai University of Engineering Science, Shanghai 201620, China;*

²*School of Optical-Electrical and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China*

Abstract

Significance The terahertz (THz) radiation spectrum, lying between the infrared and microwave regimes, encompasses a wide range of energy levels of lattice vibrations and molecular rotations in matter. Hence, THz radiation has potential applications in fields including matter manipulation, nondestructive testing, and biomedical imaging. However, a key challenge hindering the application of THz radiation is the need to further improve its energy and intensity. Therefore, exploring techniques for producing high-energy THz radiation remains a major focus and hot topic.

One method for generating intense THz radiation involves the nonlinear interaction between high-energy, ultrafast laser pulses and gases, resulting in a remarkably wide bandwidth of approximately 200 THz. This exceeds other commonly used THz radiation sources, such as optical-conductive antennas or optical rectification crystals, which are usually limited to a bandwidth below 5 THz.

Furthermore, air-based THz sources offer advantages over solid-state sources, including immunity to laser damage and renewable properties, making them a pivotal for generating powerful and wide-ranging THz radiation.

An early study involving air plasma-based THz sources employed a one-color femtosecond laser pulse (usually with a wavelength near 800 nm from a Ti:Sapphire laser) for THz generation. A two-color scheme, combining the fundamental laser field and its second harmonic, has also been intensively studied over the past 20 years. For the two-color scheme, it was revealed that the asymmetry of the two-color optical field plays a crucial role in generating high-intensity THz radiation. Nevertheless, the asymmetry of the optical field provided by the two-color field remains limited. Hence, there is a strong incentive to utilize multi-color laser fields to optimize the conversion efficiency of THz radiation, while also enabling manipulation of its properties.

Progress This paper provides a comprehensive review of THz generation techniques based on air plasma, with an emphasis on the evolution from one-color field excitation to an advanced excitation scheme with a multi-color optical field. The development and progression of these methodologies are discussed in detail. In 1993, Hamster *et al.* focused a one-color femtosecond laser onto a gas target and observed THz radiation emitted from the gaseous plasma. However, the energy conversion efficiency of THz radiation produced by one-color laser fields was low, of the order of 10^{-7} – 10^{-5} , limiting the further applications of this THz source.

In 2000, Cook *et al.* first employed a two-color laser field to produce THz waves from air plasma. Their findings demonstrated that the amplitude of the resulting THz waves was much stronger than that generated using a one-color field. In the two-color field experiments, a BBO crystal used to generate a second harmonic pulse was installed before the laser focus in the beam path. By adjusting the distance between the BBO crystal and the focal point, the relative phase of the two-color fields could be finely controlled. Later, K. Y. Kim *et al.* proposed a local current model to explain the underlying physical mechanism. With the two-color field, the breaking of the symmetry of the electron motion effectively produces a net transverse electron current in the plasma, resulting in THz electromagnetic radiation (Fig. 4).

Cleric *et al.* explored the impact of the pump-laser wavelength on THz generation in the near-IR to far-IR regime. Their research showed that the yield of THz radiation increases with the wavelength of the pump laser field (Fig. 6). In the latest reported two-color field scheme with a pump laser in the mid-infrared regime, the strength of the THz radiation field reaches up to 100 MV/cm, with a corresponding energy conversion efficiency of 2.36%. Moreover, Vvedenskii's group discovered that non-harmonic two-color lasers can also be used to generate THz radiation (Fig. 8).

To further improve the conversion efficiency, the exploration of multi-color fields was proposed in a theoretical perspective. L. Bergé *et al.* proposed a multi-color field scheme with a sawtooth wave shape to generate THz radiation. The multi-color sawtooth field maximizes the electron drift velocity at the ionization instants, which increases the THz efficiency by up to 1 order of magnitude compared to a standard two-color field (Fig. 9). However, the construction of the sawtooth wave requires many harmonic laser pulses, and its synthesis is currently challenging.

Experiments frequently exploit a three-color field to mimic a sawtooth-wave excitation. Jeremy A. Johnson's group utilized a three-color field from an optical parametric amplifier (OPA), composed of a fundamental frequency, the variable IR signal, and idler outputs from the OPA. They achieved higher THz radiation intensities compared to a two-color laser field (Fig. 12). With the three-color pulse from the OPA, the relative phases of the optical fields were not controlled, and the temporal waveform of the multi-color optical field was therefore random.

Recently, an inline setup for three-color field synthesis for THz excitation was demonstrated. This setup allows the relative phases between the three optical fields to be controlled independently with attosecond precision. It was found that both photoionization and THz emission can be controlled coherently. THz enhancement, relative to the widely used two-color scheme, was also confirmed.

Conclusions and Prospects Employing a multi-color laser field to excite air plasma for THz generation can improve conversion efficiency significantly. Furthermore, the properties of THz emission, such as its polarization and polarity, can be controlled precisely by manipulating the optical phase. Due to its high intensity and wide bandwidth, the air-based THz source holds potential for applications in the manipulation of matter, electron acceleration, and biomedicine. Moreover, utilizing phase-controlled multi-color optical fields enables coherent control of the nonlinear interaction between powerful ultrafast lasers and gases, offering potential benefits for various high-field physics studies, such as high-order harmonic generation, attosecond pulse generation, and laser micro- and nano-machining. This article reviews the progress in research on THz generation with multi-color laser fields, with emphasis on the evolution of the experimental methods from one-color excitation to two- and three-color schemes, the relevant theoretical models, as well as the effects of the laser parameters on THz energy enhancement.

Key words nonlinear optics; THz technology; strong-field terahertz radiation; multi-color femtosecond laser field; laser-plasma interaction