

铌酸锂强场太赫兹非线性时域光谱系统

才家华¹, 张保龙², 耿春艳¹, 郝思博³, 陈赛^{1,4}, 吴晓君^{1,4*}¹北京航空航天大学电子信息工程学院, 北京 100191;²中国科学院物理研究所北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100190;³北京航空航天大学网络空间安全学院, 北京 100191;⁴北京航空航天大学微波感知与安防应用北京市重点实验室, 北京 100191

摘要 强场太赫兹 (THz) 时域光谱技术在强场 THz 科学与技术中具有重要作用, 材料、物理、化学、生物等领域诸多涉及强场 THz 与物质强非线性相互作用的研究都离不开强场 THz 时域光谱技术。然而, 受限于高效率、高光束质量、高稳定性、高重复频率强场 THz 辐射源的性能, 强场 THz 时域非线性光谱技术发展缓慢。针对强场 THz 非线性光谱技术及其潜在应用中存在的难题与挑战, 在商用 kHz 钛宝石激光器的驱动下, 笔者设计并实现了一套基于铌酸锂倾斜波前技术产生强场 THz 的高度集成化时域光谱系统。在 3 mJ 激光能量泵浦下, 利用该系统在室温下实现了单脉冲能量为 6.5 μ J、峰值场强约为 350 kV/cm 的 THz 强场产生, 该系统具备强场 THz 非线性光谱测试、THz 泵浦-THz 探测、光泵浦-THz 探测、THz 发射谱测量等多种超快时间分辨测量功能, 是研究强场 THz 非线性效应的有效实验手段。

关键词 超快光学; 强场 THz 辐射; 铌酸锂; 非线性光谱; 泵浦-探测

中图分类号 O441.4 **文献标志码** A

DOI: 10.3788/CJL230435

1 引言

太赫兹 (THz) 波是指频率为 0.1~10 THz 的电磁波。THz 波的光子能量与物质振动、旋转能级的能量范围相吻合, 这使得其与物质相互作用的光谱包含着丰富的信息, 从而在材料、物理、化学、生物、信息以及工程应用^[1-12]等领域具有广阔的发展前景。THz 时域光谱技术使用的是相干探测方法, 可直接测量物质介电常数的实部和虚部信息, 并反映材料在 THz 频段的响应。THz 时域光谱技术可应用于工业环境、药物和生物医学、农业和食品、艺术品保护^[13-16]等领域, 这些应用主要通过测量弱场情况下材料的线性响应来获得 THz 频段的介电性质。

自 2002 年倾斜脉冲波前技术^[17]提出以来, 铌酸锂晶体便成为稳定、可靠、高效的强 THz 辐射源。其他产生强场 THz 辐射的方法, 如基于其他非线性晶体 (如 ZnTe)^[18]或有机晶体的光学整流^[19]、自旋 THz 发射^[20]以及基于大口径光电导天线^[21]、激光等离子体 THz 源^[22]等的方案都取得了显著进步。同时, 随着高功率飞秒激光技术的发展, 飞秒激光泵浦的 THz 脉冲的输出能量已发展到 mJ 量级, 峰值电场强度已从 kV/cm 增大到 MV/cm^[23], 对物质的调控也从弱场过渡到强场, 人们对

THz 脉冲与物质相互作用的研究也从线性调控转变为非线性调控。通过调控强场 THz 辐射与物质的相互作用不仅可以实现对材料非平衡物态的调控^[2]、电子自旋的相干调控^[24], 还可以诱导材料相变^[1]以及实现电子加速与操控^[8]等。

作为强场 THz 非线性光谱技术的重要组成部分, 泵浦-探测技术正逐渐成为观测强场 THz 诱导非线性效应的重要手段。在光学频段, 对于两束具有一定时间延迟的激光来说, 其中的一束能量较高且更早到达样品, 用于激发样品中的电子, 将其称为泵浦光; 另一束能量较弱, 用于探测样品被泵浦光激发后载流子的动力学过程, 称为探测光。在 THz 频段, 应用最广泛的是光泵浦-THz 探测 (OPTP) 技术, 主要用于研究半导体内载流子的超快动力学^[25-26]。OPTP 用弱场 THz 脉冲代替泵浦-探测技术中的探测光, THz 光子能量在半导体载流子和声子的共振能量范围内, 是研究半导体载流子和声子动力学的重要手段。类似地, 将 OPTP 技术中的泵浦光替换为强 THz 脉冲, 可以实现 THz 泵浦-THz 探测 (TPTP) 技术, 该技术可用于研究强场 THz 激发的载流子碰撞电离动力学^[27]、等离子体非线性调制^[28]、材料相变^[1], 以及许多新材料中远离平衡态的非平衡量子物相等。另外, 随着强场 THz 和二

收稿日期: 2023-01-05; 修回日期: 2023-02-15; 录用日期: 2023-03-24; 网络首发日期: 2023-04-02

基金项目: 国家重点研发计划 (2022YFA1604402)、国家自然科学基金 (11827807)

通信作者: *xiaojunwu@buaa.edu.cn

维光谱技术的发展,二维光谱技术得以拓展到 THz 频段。二维光谱可用于揭示隐藏在传统一维线性光谱中的特征^[29]。二维 THz 光谱的发展相较于可见光和红外频段,尚处于早期阶段。该技术目前已被用于研究凝聚态系统中大多数非共振电子和一些具有强非线性的晶格振动响应^[30-31]、气相分子的 THz 二维旋转光谱^[32]、半导体中声子的旋转光谱等^[33]。此外,二维 THz 光谱与非共振拉曼(Raman)过程的光学激发、检测相结合,使得混合二维 THz-拉曼光谱技术成为可能^[34]。

除了测量材料在弱场情况下的线性响应和强场情况下的非线性响应外,THz 光谱技术的另一项重要功能是由于 THz 发射光谱的测试。THz 发射光谱技术是一种无损伤、非接触式的光谱测量手段^[35],是一种分析、测量非线性光学过程的有力工具^[36]。在飞秒激光激发下,瞬态载流子、偶极子、声子、激子和其他准粒子会发生变化,进一步诱导皮秒级 THz 脉冲辐射。辐射的 THz 脉冲的波形中携带着丰富的物理信息,如对掺杂类型、载流子迁移率等敏感的幅度、相位、极性和偏振等信息^[37],这些信息可用于对物质的特性进行分析。在 THz 发射光谱技术的基础上,研究人员发展了一种激光扫描 THz 成像系统——激光 THz 发射显微镜^[38],其工作原理为:将近红外飞秒激光脉冲聚焦到样品上的待探测位置并检测其 THz 发射光谱,移动脉冲在样品上的聚焦位置即可实现扫描成像。其成像的空间分辨率依赖于泵浦激光而非 THz 波的衍射极限,因此可以实现微米量级的空间分辨率。该技术可被应用于集成电路的非接触式诊断^[39]、半导体材料 THz 发射光谱

的测量^[40]以及自旋 THz 发射^[41]等。

尽管 THz 光谱技术的应用十分广泛,但系统往往需要根据不同的应用需求重新设计,所能实现的功能比较单一。特别地,下一代通信技术对通信频段频率和通信速率提出了更高要求,当前基于硅基材料体系的二极管、场效应晶体管体系由于损耗和迁移率等问题,很难拓展到高频微波特别是 THz 波段,需要在新材料、新机理和新方法等方面实现突破。

针对新材料开展 THz 频段非平衡物态调控研究的需求,笔者设计并搭建了一套高度集成的强场 THz 非线性时域光谱系统。该系统兼具非线性 THz 光谱测试、光泵浦-THz 探测、THz 泵浦-THz 探测、THz 发射光谱测量等能力。其中强场 THz 脉冲由超短飞秒激光泵浦铌酸锂晶体通过倾斜波前技术产生,在室温情况下,单脉冲能量可达 6.5 μJ ,转换效率约为 0.22%,峰值频率位于 0.4 THz 处,到达样品上的最大峰值场强约为 350 kV/cm。笔者设计的强场 THz 时域光谱系统仅使用一台飞秒激光放大器,整体光路设计紧凑,搭建在两块 60 cm \times 90 cm 的面包板上,方便移动。该系统可为 THz 强场非线性、泵浦-探测和 THz 发射光谱等研究提供全面的解决方案,并且经简单改装后可实现更多功能,具有较高的应用价值。

2 铌酸锂强场 THz 非线性时域光谱系统设计

笔者搭建的强场 THz 非线性时域光谱系统如图 1 所示。系统使用的激光光源为 Ti:sapphire 飞秒激光放

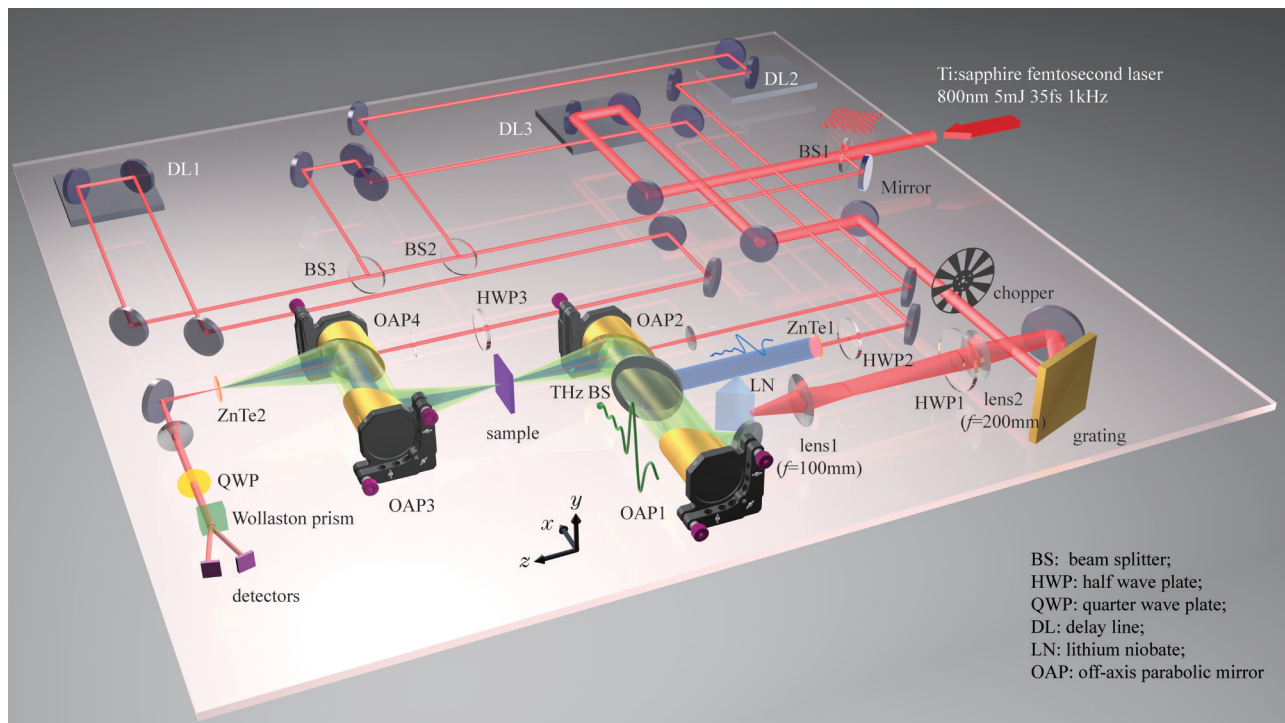


图 1 基于飞秒激光放大器泵浦的铌酸锂强场 THz 非线性时域光谱系统

Fig. 1 Strong field THz nonlinear time domain spectrometer based on lithium niobate pumped by a femtosecond laser amplifier

大器,其输出激光的中心波长为 800 nm、脉宽为 35 fs、重复频率为 1 kHz,输出泵浦能量为 5 mJ。飞秒激光进入系统后经分束镜 1(BS1)分束,其中 80% 的能量作为铌酸锂的泵浦光,剩下的 20% 由分束镜 2(BS2)进一步分束。系统中的强场 THz 脉冲(图 1 中的绿色半透明光路)基于倾斜波前技术,由铌酸锂晶体通过光整流产生。用于产生强场 THz 脉冲的泵浦光被引导并入射到一个光栅常数 $d=1/1500$ mm 的反射光栅上。为了满足相位匹配条件,入射角设为 21° ,对应负一级衍射角为 57.3° 。一个半波片(HWP1)将衍射光由水平偏振光转换为垂直偏振光,同时,由一对焦距分别为 200 mm 和 100 mm 的透镜组成的 4f 成像系统使入射到铌酸锂表面上的衍射光成缩小(1/2)的像。由此可将 800 nm 泵浦光的波前倾斜至 62° ,以满足产生的 THz 波和红外脉冲在铌酸锂晶体中的相位匹配条件并降低输出 THz 波的色散。铌酸锂表面的泵浦激光光斑为椭圆形,其长轴约为 3 mm,短轴约为 1 mm。用于产生 THz 波的铌酸锂晶体为三棱柱形,其垂直方向为晶体的 z 轴,截面为等腰三角形,两个底角均为 62° ,晶体被放置在第二个透镜的焦平面上。

上述所述剩余的 20% 能量由分束镜 2(BS2)进一步分束。第一分束经延迟线 2(DL2)后作为 THz 发射光谱和 OPTP 的泵浦光,之后经透镜聚焦后穿过离轴抛物面镜 2(OAP2)的小孔入射到样品表面。延迟线 2 用于控制 800 nm 泵浦光和 THz 探测光之间的时间延迟。第二分束经分束镜 3(BS3)后,一部分被引导入射到 ZnTe 发射晶体(ZnTe 1),产生弱场 THz 波(图 1 中的蓝色光路),其偏振方向由一个半波片(HWP2)控制。弱场 THz 波经由 THz 分束片(THz-BS,由高阻硅片实现)与强场 THz 波合束,作为 OPTP 和 TPTP 的探测光。

剩下的 800 nm 飞秒光经延迟线 1(DL1)被引导透过 OAP4 的小孔,与强场 THz 波、弱场 THz 波共同聚焦在 ZnTe 探测晶体(ZnTe 2)上,由 ZnTe 探测晶体、四分之一波片、沃拉斯顿棱镜和一对平衡探测器组成的电光采样系统通过线性电光效应进行 THz 脉冲的相干探测^[42]。

3 强场 THz 静态非线性光谱

强场 THz 静态光谱系统如图 2(a)所示,机械斩波器设置在泵浦光路中光栅之前的位置,斩波频率设置为 500 Hz。铌酸锂晶体辐射的 THz 脉冲经准直后聚焦到样品位置,再经两个离轴抛物面镜聚焦到 ZnTe 探测晶体上,与延迟线 1 中的探测光在时间和空间上重合。基于电光采样原理采集 THz 时域波形。此时光路中有两条可以选择的延迟线,笔者选择移动延迟线 1 而固定延迟线 3 来进行 THz 波形的时间分辨探测。如图 2(b)所示,在常温下($T=293$ K),通过调整激光脉冲的脉宽来抑制激光在晶体中的其

他非线性效应^[43],如自相位调制(SPM)^[44]等。当脉宽达到 280 fs,铌酸锂晶体的泵浦功率达到 1.5 W(对应的单发泵浦脉冲能量为 3 mJ)时,可以产生能量约 6.5 μ J 的 THz 脉冲,室温下的最大转换效率约为 0.22%。对泵浦光路的光栅角度、成像关系等进行精细的优化和调整,测量了泵浦光功率与 THz 能量的依赖关系,并计算得到了相应的转换效率。随着泵浦光功率提高,测量的 THz 能量单调上升,未出现饱和现象;当泵浦光功率较低时,转换效率随泵浦光功率的提高而上升,当泵浦光功率达 0.75 W 时,转换效率维持在 0.20% 以上;泵浦光功率提高至 1.25 W 后转换效率不再继续提高,出现饱和现象。此时,若继续提高泵浦光功率,则 THz 能量可以继续提高,直至达到阈值。

图 2(c)显示了 THz 光斑的形状轮廓,该光斑形状是在光路中放置样品后的 THz 焦点位置测得的。聚焦光斑的直径为 1.6 mm(1/e),光斑呈高斯型分布。由于传输损耗的存在,测得该位置处的最大单脉冲能量为 4.8 μ J。当泵浦功率为 1.5 W 时,基于电光采样测得了典型的 THz 时域波形及其频谱,如图 2(d)和图 2(e)所示。脉冲宽度约为 0.6 ps(半峰全宽),峰值频率位于约 0.4 THz 处,高频分量可以达到 2 THz。由单脉冲能量、脉冲持续时间和光斑大小等参数计算得到样品位置处的 THz 场强最高可达 350 kV/cm。此外,还利用液晶感温显色纸对聚焦的 THz 光斑进行了探测,图 2(f)是使用不同能量的飞秒激光泵浦铌酸锂晶体时测得的聚焦 THz 光斑。当液晶感温显色纸(深圳幻彩变色科技有限公司, YJ2822)的局部位置被外在因素加热时,该位置颜色会加深。THz 辐射使得液晶感温显色纸温度升高,相应位置的颜色加深,通过颜色变化即可探测 THz 波。当泵浦激光的能量大于 0.5 mJ 时,对应的 THz 能量为 0.67 μ J,可以观测到深颜色的 THz 光斑。随着泵浦激光的能量增强,焦点处的 THz 场强增大,THz 光斑处的颜色逐渐加深而形状无明显变化。由此可见,液晶感温显色纸是一种可靠、使用灵活、价格低廉、无须其他设备的强场 THz 光斑探测手段。

3.1 Z-扫描强场 THz 非线性光谱

Z-扫描是研究 THz 场致非线性效应的重要方法之一,笔者使用两种硅片依赖于电场强度的非线性吸收来显示强场 THz 的非线性物态调控能力。一种硅片是厚度为 0.3 mm 的 N 型掺杂硅片,掺杂密度约为 10^{15} cm^{-3} ;另一种是厚度为 0.5 mm 的高阻硅片(电阻率大于 10 $\text{k}\Omega\cdot\text{cm}$)。采用 Z-扫描方法改变 THz 电场强度,强 THz 脉冲正入射至样品表面,当样品放置在 OAP2 的焦点处时,记 $Z=0$ mm,对应于聚焦的峰值 THz 强场。图 3 显示了两种不同硅片的透射率与其最小透射率之比(即相对 THz 透射率)与位置 Z 的关系,其中菱形是掺杂硅片的结果,灰色圆圈是高阻硅

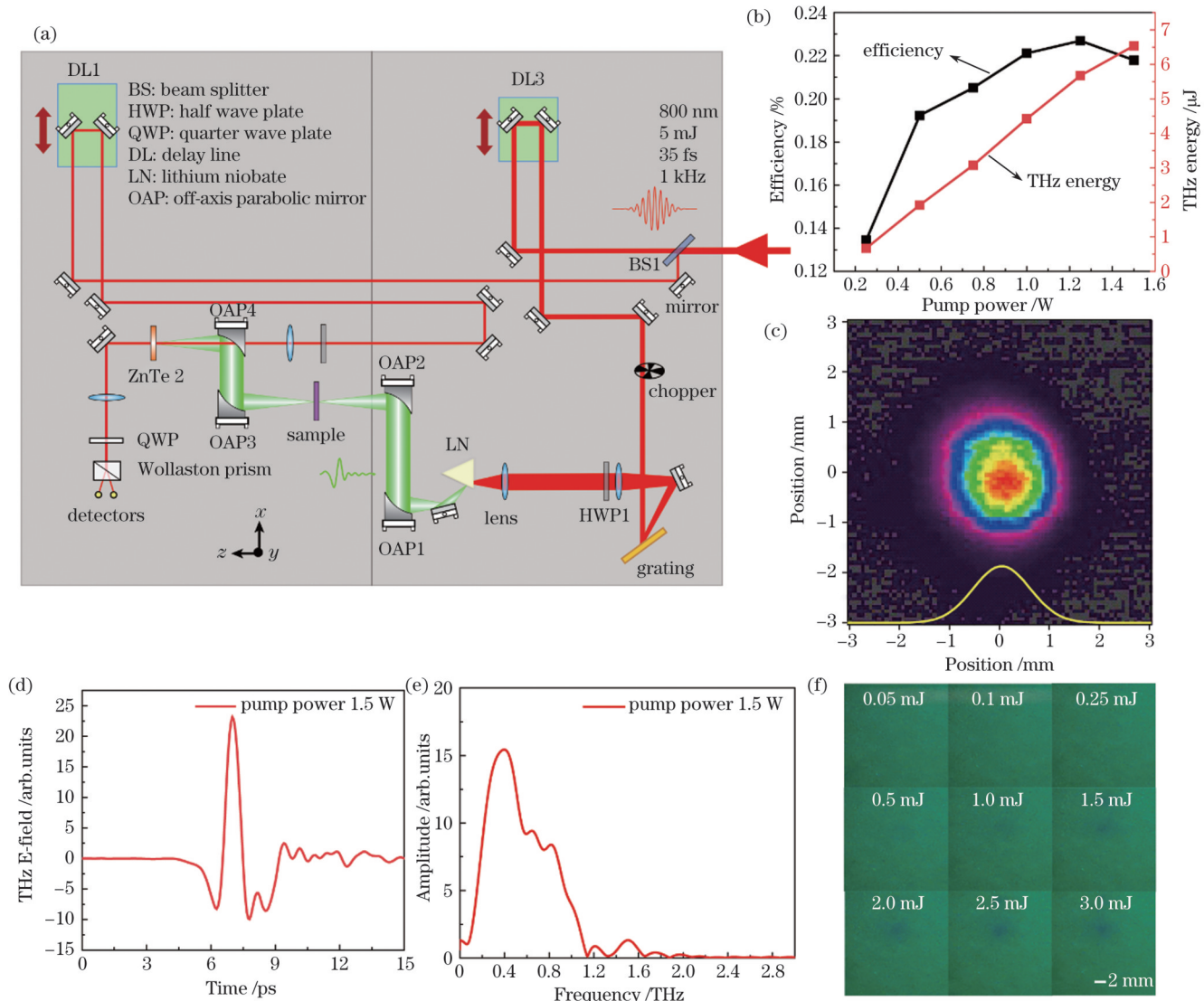


图 2 强场 THz 非线性光谱光路和强 THz 脉冲特性。(a) 光路图, 需要用反射镜替换图 1 中 50:50 的分束片, 以集中铌酸锂泵浦光的能量; (b) 测量的 THz 脉冲能量和对应的转换效率与泵浦光功率的依赖关系; (c) 在 OAP2 焦点处测量的直径约为 1.6 mm (1/e) 的聚焦 THz 光斑的轮廓; (d)(e) 当泵浦功率为 1.5 W 时产生的强 THz 脉冲时域波形及其对应的峰值频率为 0.4 THz 的频谱; (f) 使用液晶感温显色纸探测聚焦 THz 光斑

Fig. 2 Nonlinear strong field THz path and characterization of the realized strong THz pulse. (a) Optical path setup for the strong THz spectroscopy (it is necessary to replace the 50:50 beam splitter in Fig. 1 with a mirror to concentrate the power of the pump light input to lithium niobate); (b) measured THz energy and corresponding conversion efficiency as a function of the pump power; (c) focused THz beam profile with a diameter of about 1.6 mm (1/e) measured at the focus of OAP2; (d)(e) a typical strong THz temporal waveform when the pump power is 1.5 W and its corresponding frequency spectrum with a peak frequency of 0.4 THz; (f) detection of focused THz beam profile using liquid crystal thermochromic paper

片的结果。当样品沿 THz 入射方向 (Z 方向) 远离焦点时, THz 电场强度降低。如图 3 所示, 在高阻硅片中未发现存在非线性吸收现象。然而, 对于掺杂硅片, 其透射率与最小透射率之比随着 THz 电场强度的增加而增大, 其最大透射率是最小透射率的 1.2 倍, 显示出强烈的非线性现象。这一现象可以通过掺杂硅片导带中电子的谷间散射效应来解释^[23,45]: 低能谷中的电子可以被强 THz 场激发到导带中的高能谷, 而高能谷中的电子具有更大的有效质量, 导致迁移率和电导率下降, 在实验中表现为 THz 的透射率增大。

Z-扫描可以用来简单直接地观测强 THz 场诱导的非线性现象。

3.2 强场 THz 自探测光谱

通过 Z-扫描观测非线性效应不需要测量完整的 THz 光谱, 只需要测量 THz 透射信号的峰值即可。利用延迟线 1 进行时域光谱扫描, 测量 THz 透射波形, 对其进行傅里叶变换后可以得到频域信息, 从而可以观测强 THz 诱导的透射率谱自调制。先前的研究表明^[46], 在不同场强的 THz 入射场下, THz 非线性超表面的透射谱上会出现非线性共振频率移动。该超表面

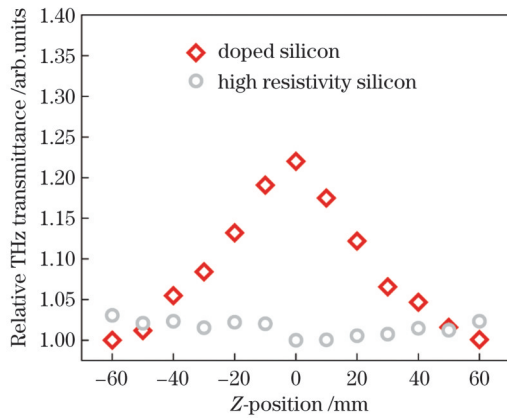


图3 掺杂硅片和高阻硅片的相对 THz 透射率随 Z 位置的变化
Fig. 3 Relative THz transmittance of the doped and high-resistivity Si as a function of Z-position

由金劈裂谐振器 (SRRs) 矩形阵列组成, 其单个单元如图 4(a) 所示。金环矩形单元的周期为 $69 \mu\text{m}$, 环内侧壁间距为 $47 \mu\text{m}$, 臂宽为 $6 \mu\text{m}$, 厚度为 80 nm , 在其中的一个臂上加工了宽度 $g=15 \text{ nm}$ 的纳米缝。金环矩形单元生长在厚度为 0.5 mm 的高阻硅衬底上。仿真

计算表明, 当入射 THz 波的电场方向沿包含纳米缝的臂的方向时 (TM 偏振), 在纳米缝处会产生约 10^3 量级的局部场增强^[46-47]。如图 4(b) 所示, 在强 THz 场诱导的包含 THz 非线性超表面的样品中观察到了 TM 偏振下的非线性效应。当入射场的场强从较弱的 2.5 kV/cm 提高到较强的 180 kV/cm 时, 共振频率从 0.73 THz 下降到 0.68 THz , 产生了约 50 GHz 的非线性频率红移。在空白的高阻硅衬底上, 类似的现象不会被探测到。这种非线性频率自调制是由超表面纳米缝处的局部场增强导致的。当入射场强为 2.5 kV/cm 时, 纳米缝可被视为绝缘介质; 当入射场强提高到 180 kV/cm 时, 纳米缝处增强的电场诱导级联碰撞电离导致载流子倍增, 使得局部衬底的电导率提高, 纳米缝闭合, 表现为共振频率红移。数值仿真结果如图 4(c) 所示, 2.5 kV/cm 的入射场对应于纳米缝打开 (电导率为 0 S/m), 180 kV/cm 的入射场对应于纳米缝闭合 (电导率为 $5 \times 10^5 \text{ S/m}$), 与实验结果的变化趋势相同。强 THz 自探测光谱技术具有观察由碰撞电离导致的非线性频率移动等非线性效应的强大能力。

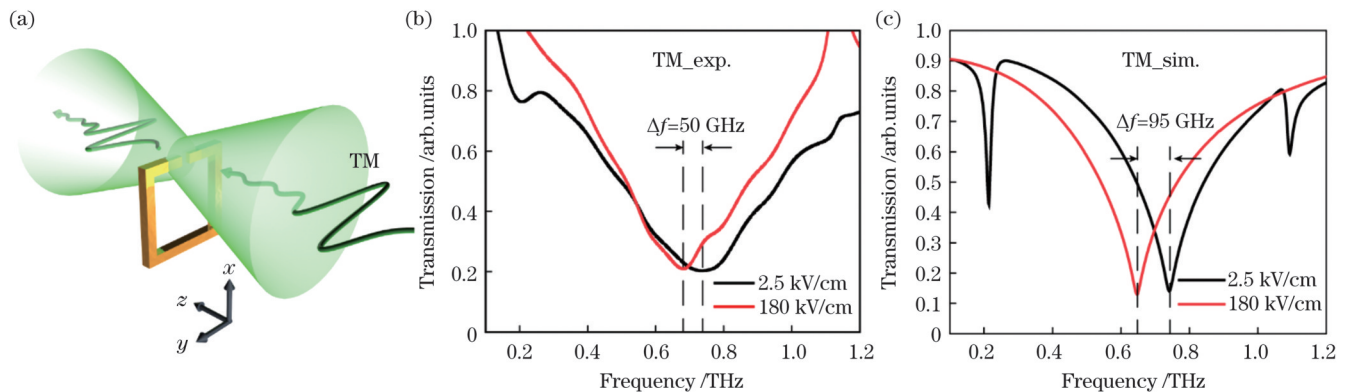


图4 强场 THz 诱导的非线性频率调制。(a) TM 偏振的 THz 入射脉冲示意图; (b)(c) 在入射场强为 2.5、180 kV/cm 下测量的 TM 偏振脉冲的透射率谱及其对应的仿真结果

Fig. 4 Strong field THz induced nonlinear frequency modulation. (a) Schematic of TM polarization of the incident THz pulse; (b)(c) measured transmission spectra under TM polarization at the incident field intensities of 2.5 and 180 kV/cm and its corresponding simulation results

4 强场 THz 泵浦-探测光谱

4.1 THz 泵浦-THz 探测

THz 泵浦-THz 探测 (TPTP) 系统如图 5(a) 所示。将铍酸锂产生的强场 THz 作为泵浦光, 将 ZnTe 发射晶体产生的弱场 THz 作为探测光, 采用 THz 分束片将泵浦光和探测光合束, 合束后的光经 OAP2 共线地聚焦到样品位置。本系统使用高阻硅片将 THz 泵浦光和 THz 探测光合束, 会损失掉一部分泵浦能量, 实测的 THz 泵浦光在样品位置处聚焦的场强约为 180 kV/cm 。THz 泵浦光的偏振方向为竖直方向, THz 探测光的偏振方向可由二分之一波片 (HWP2) 通过调节入射至 ZnTe 发射晶体的 800 nm 近红外光的偏振方向来调节, 一般设置为水平偏振。在 OAP3 和 OAP4 之间设

置一个起偏方向为水平偏振的 THz 偏振片, 它只允许探测光通过, 抑制 THz 泵浦光。笔者采用的硅片合束的方法相较于使用偏振片合束可以明显简化正交偏振合束的光路调整过程, 而且适用于对入射偏振敏感的样品 (即要求 THz 探测光有 THz 泵浦光偏振方向的分量), 与后文中使用的非正交偏振合束需求兼容。此外, 将机械斩波器设置在 THz 探测光路上, 斩波频率设置为 500 Hz ; 同时, 锁相放大器采集重复频率为 500 Hz 的信号, 进一步抑制 THz 泵浦信号的干扰。进行 TPTP 实验时, 通过延迟线 3 (DL3) 来调整 THz 泵浦和 THz 探测之间的相对时间延迟。此外, 该系统还具备光谱分辨的 TPTP 能力, 可在调节 THz 泵浦光与 THz 探测光之间时间延迟的同时, 进行完整的 THz 时域透射谱扫描, 对 THz 时域透射谱进行傅里叶变换

后,可在时间分辨的 THz 频谱中提取感兴趣的信息。

尽管 TPTP 中可用的 THz 泵浦场强达到了 180 kV/cm,但对于一些材料而言尚不足以激发出明显的非线性效应。这里仍然使用 THz 纳米非线性超表面来进一步增强 THz 局部场强。研究表明^[46],当入

射的 TM 偏振的 THz 脉冲场强达到 60 kV/cm 时,纳米缝处增强的电场足以诱导衬底的碰撞电离,导致局部电导率提高,SRRs 表现为“闭合”状态,如 3.2 节所述,THz 透射谱中的共振频率向低频移动(是一种自共振频率调制现象)。

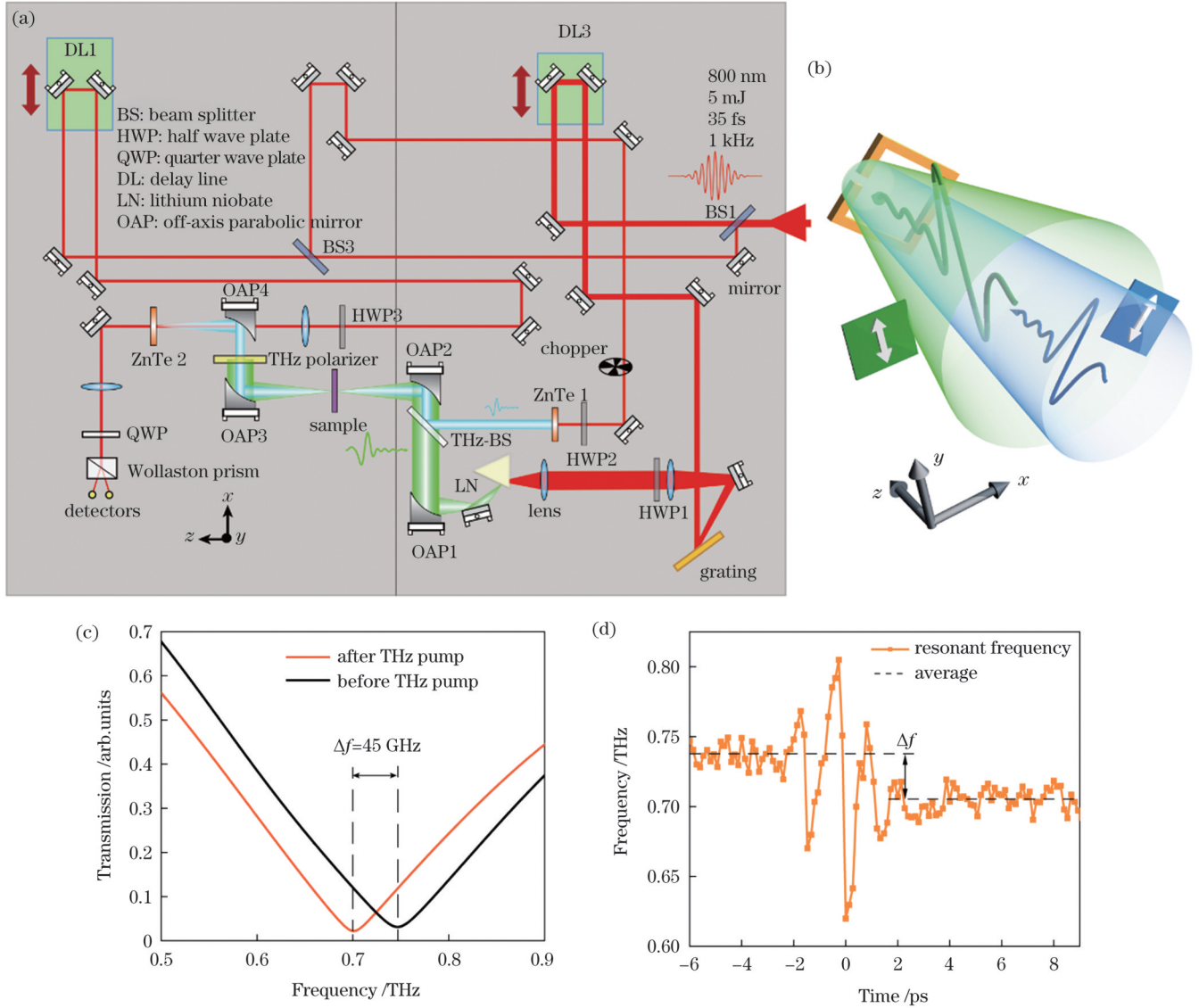


图 5 TPTP 技术。(a) TPTP 系统光路图;(b) THz 泵浦和 THz 探测的偏振方向与 SRRs 取向的关系;(c) THz 泵浦前后的典型 THz 探测透射率谱,表现出 45 GHz 的频率移动;(d) 高阻硅衬底上 THz 纳米超表面的共振频率-时间延迟 TPTP 动力学曲线

Fig. 5 THz pump-THz probe (TPTP) technology. (a) Optical path diagram of TPTP system; (b) relation between the polarization direction of THz pump and THz probe and the orientation of SRRs; (c) typical THz probe transmission spectra before and after THz pump, showing a frequency shift of 45 GHz; (d) TPTP dynamic curve of resonant frequency-time delay for THz-nano metasurface on highly resistive silicon substrate

利用 TPTP 技术,观测到了 THz 泵浦脉冲对 THz 探测脉冲的共振频率调制现象。由于该 THz 非线性超表面对入射场的偏振敏感,要求 THz 泵浦和 THz 探测均以 TM 偏振作用于超表面,再考虑到 THz 探测光的信噪比,将 SRRs 含有纳米缝的臂的方向设置为与 THz 泵浦偏振方向成 45° 夹角,并通过 HWP2 将 THz 探测光的偏振方向调整成沿含有纳米缝的臂的方向,如图 5(b) 所示。由此,THz 泵浦的有效作用场强降至

127 kV/cm,仍足以“闭合”纳米缝。随后利用 THz 偏振片抑制 THz 泵浦光,而 THz 探测光的水平分量仍可以通过并被探测到。THz 泵浦前(约 3.9 ps)和 THz 泵浦后(约 4.7 ps)的 THz 探测光的透射率谱如图 5(c) 所示,THz 泵浦导致 THz 探测光的共振频率从 0.746 THz 下降至 0.701 THz,产生了 45 GHz 的红移。时间分辨的共振频率动态移动如图 5(d) 所示,其中实线为实验数据,虚线为 THz 泵浦前后实验数据的平均值。基于平均值

计算的共振频率从 0.737 THz 下降到 0.705 THz,并在测量的时间窗口内几乎没有恢复,这是由于高阻硅衬底的载流子寿命远长于测量窗口范围。该现象直接表明了载流子是由高阻硅衬底中的强 THz 场诱导的碰撞电离导致的。TPTP 系统为强 THz 场致半导体载流子动力学等研究提供了有力手段。

4.2 光泵浦-强弱 THz 交替探测

光泵浦-强弱 THz 交替探测如图 6(a)所示,这里使用铌酸锂晶体产生的强 THz 辐射作为探测光,用于样品激发的 800 nm 泵浦光经由延迟线 2 并穿过 OAP2 上的小孔,与 THz 探测光共线入射到样品表面并激发样品。泵浦光和探测光之间的时间延迟可由延迟线 2 或延迟线 3 来调整。在强 THz 探测光产生后,其强度可由一对线栅 THz 偏振片调控。泵浦光的最大单发能量为 244 μJ ,样品上光斑的直径由聚焦透镜的位置进行调整,约为 2 mm 或更小。由于引入强 THz 波作为探测光,通过改变强 THz 探测光的入射场强,该技术可以观测不同强度

的 THz 场-光致非线性效应并对其进行分析。与后文的光泵浦-弱场 THz 探测(OPTP)技术相比,光泵浦-强弱 THz 交替探测拓展了材料研究的维度,THz 场强成为新的依赖项而被引入到泵浦-探测技术中。

利用该技术可以对 THz 非线性超表面产生的不同场强 THz 场诱导的高阻硅衬底的谷间散射和碰撞电离进行观测。高阻硅衬底由 $83 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 泵浦通量的 800 nm 飞秒激光进行光掺杂,激发光生载流子。光泵浦和 THz 探测之间的时间延迟为 46 ps,远小于高阻硅的载流子寿命。如图 6(b)所示,当入射 THz 的场强由 0.53 kV/cm 逐渐提高至 64 kV/cm 时,共振频率蓝移,且在 3.3~64 kV/cm 的入射场强下,远离共振频率的低频(小于 0.3 THz)处的透射率几乎没有变化,这表明谷间散射导致的电导率降低仅发生在纳米缝处。根据高阻硅衬底的弱场 THz 透射谱在泵浦前后的变化,笔者估计泵浦后的电导率约为 650 S/m。以此数据进行仿真的结果如图 6(d)所示,在仿真中仅降低

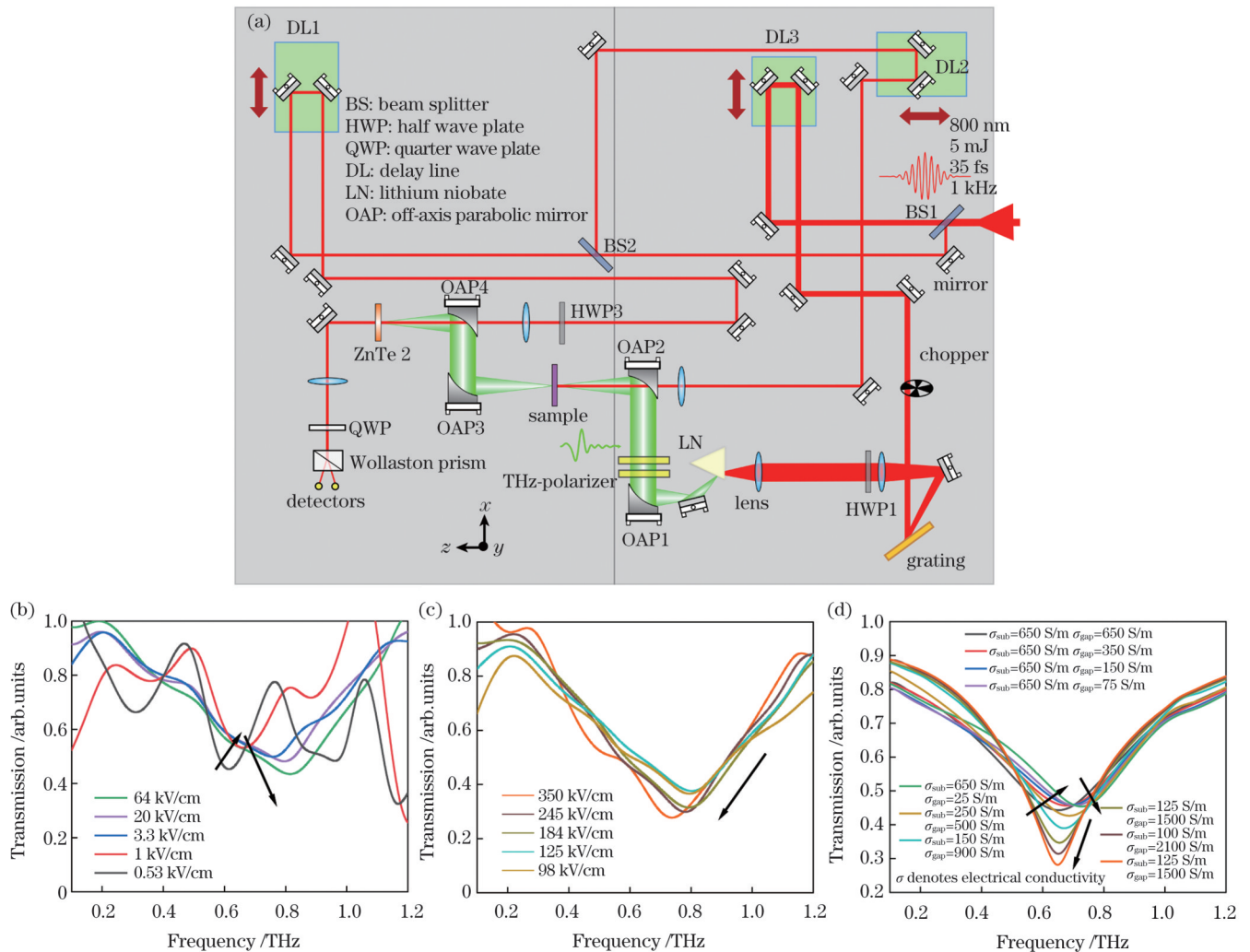


图 6 光泵浦-强弱 THz 交替探测技术。(a)光泵浦-强弱 THz 交替探测系统光路图;(b)(c)不同入射场强下的 THz 透射率谱;(d)对应于(b)、(c)的仿真结果

Fig. 6 Optical pump-strong and weak THz alternate probe technology. (a) Optical path diagram of optical pump- strong and weak THz alternate probe system; (b)(c) THz transmission spectra with different incident field strengths; (d) numerical simulation results corresponding to (b) and (c)

纳米缝处的电导率至 25 S/m, 仿真得到的变化趋势与实验结果相同。继续提高入射 THz 场强, 如图 6(c) 所示, 共振频率开始红移, 共振强度逐渐提高, 远离共振频率的低频处的透射率提高。裸衬底的实验结果显示, 当入射 THz 场强大于 64 kV/cm 时会发生谷间散射, 导致电导率下降(此处未显示)。这表明大面积衬底的电导率下降。共振频率红移是由于纳米缝处局部增强的入射 THz 探测光的场强足以诱导纳米缝处的衬底发生碰撞电离, 纳米缝处的电导率增大, 从而逐渐表现为纳米缝闭合。图 6(d) 所示的仿真结果与实验

结果的趋势相同。然而, 实验和仿真结果并不完全相同, 这是因为: 高斯分布的 THz 光斑在不同的 SRRs 处的场强不同, 使得衬底和纳米缝处的电导率随着位置的变化而变化, 而数值仿真中并没有考虑这一因素。总之, 强弱 THz 交替探测为在光泵浦下观测由 THz 场诱导的光谱非线性自调制的变化过程提供了可靠方法, 同时为研究 THz 场致非线性效应的变化过程提供了可选手段。

4.3 光泵浦-弱场 THz 探测

光泵浦-弱场 THz 探测 (OPTP) 系统如图 7(a) 所

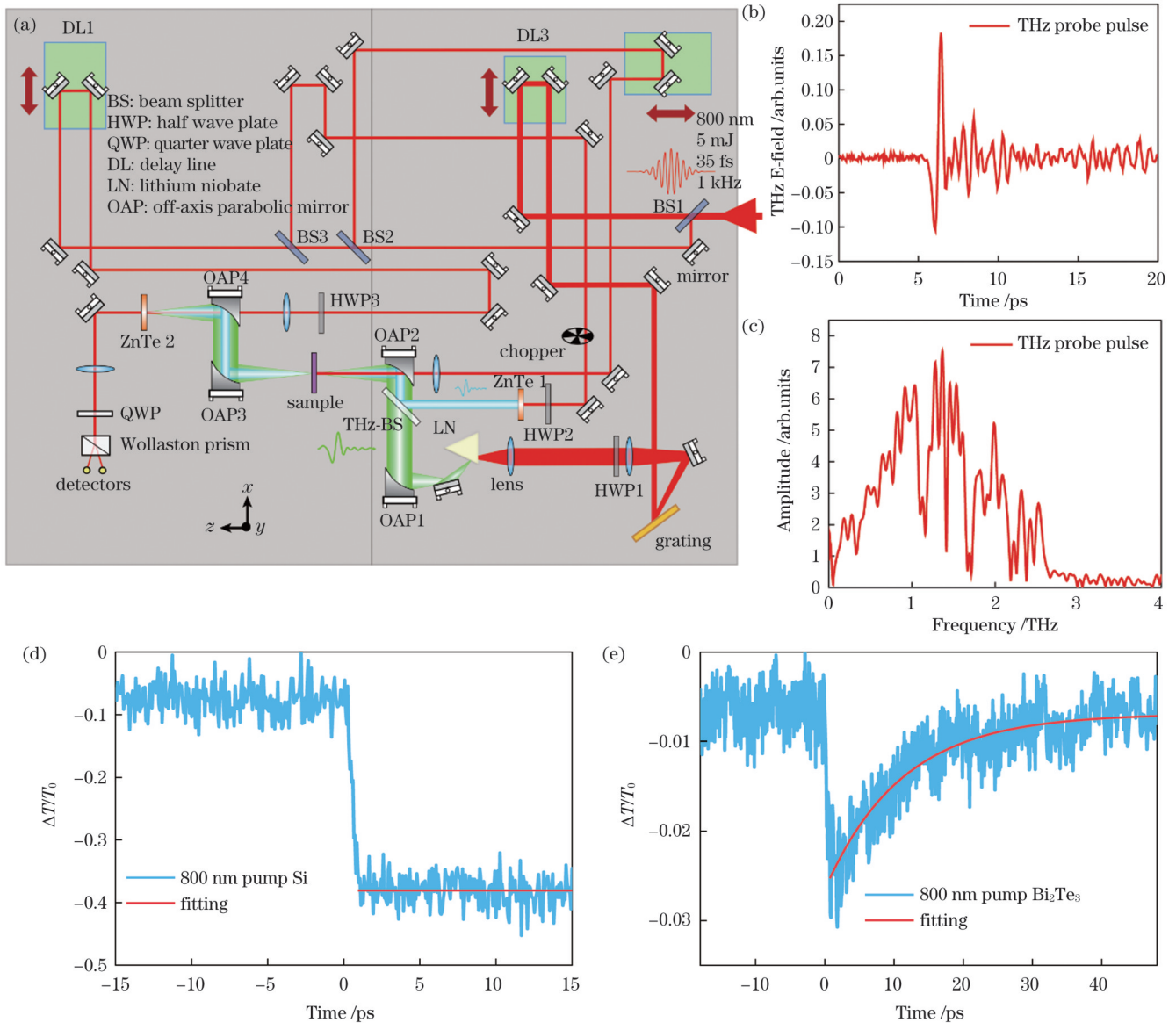


图 7 OPTP 技术。(a)OPTP 系统光路图;(b)(c)由 ZnTe 光整流产生的弱场 THz 探测脉冲波形及其频谱;(d)在泵浦通量为 $63 \mu\text{J}/\text{mm}^2$ 、中心波长为 800 nm 的泵浦光激发下, N 掺杂硅的弱场 THz 探测的 THz 时间分辨光谱;(e)在相同的泵浦光条件下, 以强场 THz 作为探测光探测的生长在单抛蓝宝石衬底上的 15 nm 厚的拓扑绝缘体 Bi₂Te₃ 薄膜的 THz 时间分辨光谱

Fig. 7 Optical pump-THz probe (OPTP) technology. (a) Optical path of OPTP system; (b)(c) weak-field THz probe temporal pulse waveform generated by ZnTe crystal optical rectification and its frequency spectrum; (d) THz time-resolved spectrum of N-doped silicon probed by weak-field THz under pump excitation with central wavelength of 800 nm and pumping fluence of $63 \mu\text{J}/\text{mm}^2$; (e) under the same pump conditions, time-resolved spectrum of 15 nm thick topological insulator Bi₂Te₃ film grown on a single-sided polished sapphire substrate was detected by the strong-field THz probe

示,弱场 THz 产生部分与 TPTP 系统弱场 THz 产生部分相同。入射到 ZnTe 发射晶体的泵浦光单发能量为 270 μJ ,其辐射的 THz 探测脉冲的时域波形及频谱如图 7(b)和图 7(c)所示,具有接近 3 THz 的频谱宽度。THz 探测脉冲经一个 THz 分束片 (THz-BS) 反射并由 OAP2 聚焦至样品位置,与 800 nm 泵浦光在空间上重合。在本 OPTP 系统中,THz 探测光的光程固定,可利用延迟线 2 控制 800 nm 泵浦光与 THz 探测光之间的时间延迟,进行光泵浦-THz 探测实验。此外,与 TPTP 系统类似,该系统还具备光谱分辨的 OPTP 能力,可以对包含不同频率信息的光激发动力学进行更全面的分析。

在 OPTP 中,样品被泵浦光激发后,价带电子被激发,产生电子-空穴对。样品内载流子浓度的增加使得其对 THz 的吸收增加,表现为透射率迅速降低,之后随着载流子的复合,样品的 THz 透射率会在数十 μs 至数十 ps 的时间尺度之内逐渐弛豫至样品被激发前的状态。半导体中载流子的弛豫过程可以按指数衰减拟合,例如使用单指数衰减模型。

$$\Delta T/T_0 = A \exp(-t/\tau) + B, \quad (1)$$

式中: ΔT 为光泵浦诱导的透射 THz 探测脉冲峰值的变化, $\Delta T = T - T_0$, T 和 T_0 分别为存在和不存在光泵浦时 THz 探测脉冲透射信号的峰值; A 、 B 为待拟合的常数; τ 为载流子弛豫过程中对应的载流子寿命。

厚度为 300 μm 、晶向为 $\langle 100 \rangle$ 的 N 型掺杂硅在泵浦通量为 63 $\mu\text{J}/\text{mm}^2$ 、中心波长为 800 nm (光子能量为 1.55 eV) 的泵浦光激发下,瞬态变化 $\Delta T/T_0$ 随泵浦光与 THz 探测光间时间延迟的变化曲线如图 7(d) 所示,蓝线为实验数据,红线为单指数衰减拟合结果。THz 时间分辨光谱在延迟时间 $\tau=0$ 附近出现快速降低的下降沿,随即由于载流子的复合又逐渐恢复。由于硅的载流子寿命长,在图 7(d) 所示的窄时间窗口中还看不到明显的载流子复合过程。类似地,本系统还可以使用铌酸锂产生的强场 THz 脉冲代替 ZnTe 产生的弱场 THz 脉冲作为探测光。以强场 THz 作为探测光,在同样的泵浦通量下,800 nm 光泵浦生长在单抛蓝宝石衬底上的 15 nm 厚的拓扑绝缘体 Bi_2Te_3 薄膜的瞬态变化 $\Delta T/T_0$ 如图 7(e) 所示,此时可以清晰地看到载流子的复合过程,表明了 ps 量级的短载流子寿命。

需要说明的是,利用图 7(a) 所示的 OPTP 系统光路可以进一步实现光泵浦-强场 THz 泵浦-弱场 THz 探测 (OPTPTP)。光泵浦所经过的延迟线 2 和强场 THz 泵浦所经过的延迟线 3 产生独立控制的时间延迟,材料的初始状态先由光泵浦激发 (例如半导体中不同载流子浓度的光掺杂),继而由 THz 泵浦引发状态的变化 (例如半导体中的碰撞电离引起的载流子浓度的变化),最后用 THz 探测对上述过程进行动力学 (光谱分辨)

探测。

5 THz 发射光谱

THz 发射光谱系统如图 8(a) 所示,不需要外加 THz 场,仅观测 800 nm 激光泵浦样品产生的 THz 辐射。在此状态下,遮挡铌酸锂晶体和 ZnTe 发射晶体的泵浦光源,延迟线 2 保持不动,通过移动延迟线 3 改变探测光的光程来探测样品在 800 nm 激光泵浦下发射的 THz 波形。与 OPTP 系统相同,泵浦光的最大单发能量为 244 μJ ,经透镜聚焦后,样品上的光斑直径约为 2 mm 或更小。

THz 发射光谱技术是研究 THz 源的重要手段之一。在常见的 THz 源中,光电导天线需要外加电场;非线性晶体由光整流效应产生 THz 波,具有信号强、频谱宽的优点,但非线性晶体中存在损伤阈值和声子吸收,导致产生的强 THz 辐射受限。另一种逐渐发展起来的自旋电子 THz 源利用飞秒泵浦光与铁磁薄膜相互作用的原理产生 THz 辐射,具有超宽带辐射、可实现强场辐射、廉价且高效等优点^[48]。如图 8(b) 所示,使用飞秒激光脉冲与生长在石英衬底上的 W(2 nm)/CoFeB(2 nm)/Pt(2 nm) 构成的金属/铁磁/金属 (NM/FM/NM) 结构相互作用^[49],通过控制外加磁场产生 THz 辐射。

如图 8(c) 所示,在飞秒激光作用下,CoFeB 产生超快自旋流,而后自旋流注入到强自旋轨道耦合的重金属层中。由于逆自旋霍尔效应,纵向的超快自旋流 j_s 转换为横向的超快电荷流 j_c ,并产生相干 THz 辐射,辐射强度为 $E_{\text{THz}} \propto j_c \propto \gamma \cdot j_s \times M / |M_s|$,式中 γ 为材料的自旋霍尔角, M 为磁化强度, M_s 为饱和磁化强度。因此,外加磁场可以调控 THz 辐射的偏振方向。在约 3.18×10^4 A/m 的外加磁场强度和 64 $\mu\text{J}/\text{cm}^2$ 的泵浦通量下,不同外加磁场方向下产生的 THz 辐射如图 8(d) 所示,表现出相位翻转。该系统可用来对非线性晶体、自旋电子发射器等多种 THz 源的发射特性进行研究。若将固定位置的样品架更换成一个可以调整样品位置的二维平移台,就可构成激光 THz 发射显微镜系统,若进一步配备显微物镜、CCD 相机等元件,就可用于研究小尺寸样品的 THz 发射光谱。

6 结 论

随着对通信频段频率和通信速率要求的提高,开发 THz 频段功能材料的需求日益增加,而综合研究 THz 与物质相互作用是其中的关键。针对材料研发在强场 THz 非线性光谱、THz 泵浦-THz 探测、强场 THz 泵浦-光探测、光泵浦-THz 探测、THz 发射光谱等技术上的测试要求,笔者研发了一套铌酸锂强场 THz 非线性综合时域光谱系统。本文以常见的半导体材料

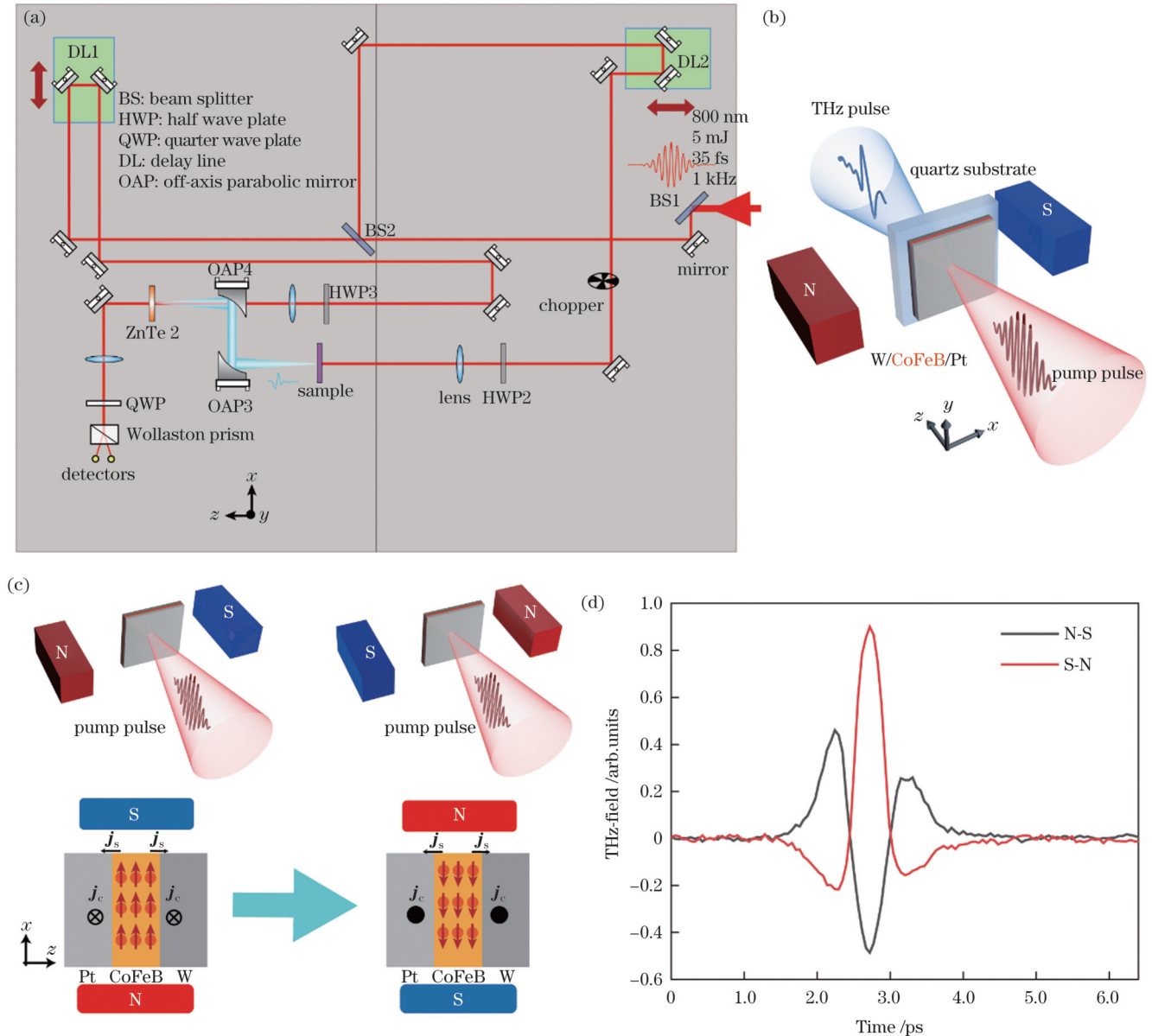


图8 THz发射光谱技术。(a)THz发射光谱系统光路图;(b)飞秒激光脉冲激发W/CoFeB/Pt异质结产生THz辐射;(c)(d)外加反向磁场导致辐射THz变化的原理和波形

Fig. 8 THz emission spectroscopy technology. (a) Optical path of THz emission spectroscopy system; (b) femtosecond laser pulse exciting W/CoFeB/Pt heterostructures to generate THz radiation; (c)(d) principle and waveform of the radiated THz signal variation induced by external opposite magnetic fields

硅为例,对多种强场THz非线性光谱技术的具体实验方法进行了研究和说明,揭示了该系统在基础研究中的综合能力和重要作用。此外,该系统还具有很强的拓展性,通过进一步改造可以实现2D-THz光谱、THz电子加速、THz克尔效应等研究功能。这种高集成、小型化的THz光谱仪为非线性THz光谱技术在物理、电子、材料、生物和工程等领域提供了应用空间。

参 考 文 献

- [1] 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.
- [2] 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.
- [3] Kozina M, Fechner M, Marsik P, et al. Terahertz-driven phonon upconversion in SrTiO₃[J]. *Nature Physics*, 2019, 15(4): 387-392.
- [4] Cocker T L, Jelic V, Hillenbrand R, et al. Nanoscale terahertz scanning probe microscopy[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(8): 558-569.
- [5] Li Q, Stoica V A, Paściak M, et al. Subterahertz collective dynamics of polar vortices[J]. *Nature*, 2021, 592(7854): 376-380.
- [6] Mashkovich E A, Grishunin K A, Dubrovin R M, et al. Terahertz light-driven coupling of antiferromagnetic spins to lattice[J]. *Science*, 2021, 374(6575): 1608-1611.
- [7] Schmid C P, Weigl L, Grössing P, et al. Tunable non-integer high-harmonic generation in a topological insulator[J]. *Nature*, 2021, 593(7859): 385-390.
- [8] Zhang D F, Fallahi A, Hemmer M, et al. Segmented terahertz

- electron accelerator and manipulator (STEAM) [J]. *Nature Photonics*, 2018, 12(6): 336-342.
- [9] Ma J J, Shrestha R, Adelberg J, et al. Security and eavesdropping in terahertz wireless links[J]. *Nature*, 2018, 563(7729): 89-93.
- [10] Hassan E M, Mohamed A, DeRosa M C, et al. High-sensitivity detection of metastatic breast cancer cells via terahertz chemical microscopy using aptamers[J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2019, 287: 595-601.
- [11] Li Y M, Chang C, Zhu Z, et al. Terahertz wave enhances permeability of the voltage-gated calcium channel[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2021, 143(11): 4311-4318.
- [12] Stanze D, Globisch B, Dietz R J B, et al. Multilayer thickness determination using continuous wave THz spectroscopy[J]. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 2014, 4(6): 696-701.
- [13] Wang Q, Xie L J, Ying Y B. Overview of imaging methods based on terahertz time-domain spectroscopy[J]. *Applied Spectroscopy Reviews*, 2022, 57(3): 249-264.
- [14] Li J, Yao Y X, Jiang L W, et al. Time-domain terahertz optoacoustics: manipulable water sensing and dampening[J]. *Advanced Photonics*, 2021, 3(2): 026003.
- [15] 陈中, 尚广彬, 傅柳, 等. 基于 RNA 测序的太赫兹波抑制白血病 K562 细胞转录组学特征分析[J]. *激光与光电子学进展*, 2022, 59(7): 0717001.
Chen Z, Shang G B, Fu L, et al. Transcriptome characteristics analysis of terahertz wave inhibited leukemia K562 cells based on RNA sequencing[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2022, 59(7): 0717001.
- [16] 顾健, 任姣姣, 张丹丹, 等. 基于多次回波数值模拟的涂层缺陷太赫兹无损检测[J]. *光学学报*, 2022, 42(15): 1512007.
Gu J, Ren J J, Zhang D D, et al. Terahertz nondestructive testing of coating defects based on multiple echoes numerical simulation [J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(15): 1512007.
- [17] 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.
- [18] Polónyi G, Monoszlai B, Andriukaitis G, et al. High-energy terahertz pulses from semiconductors pumped above the three-photon absorption edge[J]. *Optics Express*, 2016, 24(21): 23872-23882.
- [19] Shalaby M, Hauri C P. Demonstration of a low-frequency three-dimensional terahertz bullet with extreme brightness[J]. *Nature Communications*, 2015, 6(1): 1-8.
- [20] Seifert T, Jaiswal S, Sajadi M, et al. Ultrabroadband single-cycle terahertz pulses with peak fields of $300 \text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1}$ from a metallic spintronic emitter[J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 110(25): 252402.
- [21] 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.
- [22] Liao G Q, Li Y T, Liu H, et al. Multimillijoule coherent terahertz bursts from picosecond laser-irradiated metal foils[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2019, 116(10): 3994-3999.
- [23] Zhang B L, Ma Z Z, Ma J L, et al. 1.4-mJ high energy terahertz radiation from lithium niobates[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2021, 15(3): 2000295.
- [24] Wang Z, Pietz M, Walowski J, et al. Spin dynamics triggered by subterahertz magnetic field pulses[J]. *Journal of Applied Physics*, 2008, 103(12): 123905.
- [25] Beard M C, Turner G M, Schmittenmaer C A. Terahertz spectroscopy[J]. *The Journal of Physical Chemistry B*, 2002, 106(29): 7146-7159.
- [26] Zielbauer J, Wegener M. Ultrafast optical pump THz-probe spectroscopy on silicon[J]. *Applied Physics Letters*, 1996, 68(9): 1223-1225.
- [27] Hoffmann M C, Hebling J, Hwang H Y, et al. THz-pump/THz-probe spectroscopy of semiconductors at high field strengths[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2009, 26(9): A29-A34.
- [28] Ho I C, Zhang X C. Nonlinear THz pump/THz probe spectroscopy of n-doped III-V semiconductors[J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2013, 19(1): 8401005.
- [29] Lu J, Li X, Zhang Y Q, et al. Two-dimensional spectroscopy at terahertz frequencies[J]. *Topics in Current Chemistry*, 2018, 376(1): 6.
- [30] Woerner M, Kuehn W, Bowlan P, et al. Ultrafast two-dimensional terahertz spectroscopy of elementary excitations in solids[J]. *New Journal of Physics*, 2013, 15(2): 025039.
- [31] Kuehn W, Reimann K, Woerner M, et al. Strong correlation of electronic and lattice excitations in GaAs/AlGaAs semiconductor quantum wells revealed by two-dimensional terahertz spectroscopy [J]. *Physical Review Letters*, 2011, 107(6): 067401.
- [32] Lu J, Zhang Y Q, Hwang H Y, et al. Nonlinear two-dimensional terahertz photon echo and rotational spectroscopy in the gas phase [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2016, 113(42): 11800-11805.
- [33] Somma C, Folpini G, Reimann K, et al. Two-phonon quantum coherences in indium antimonide studied by nonlinear two-dimensional terahertz spectroscopy[J]. *Physical Review Letters*, 2016, 116(17): 177401.
- [34] Finneran I A, Welsch R, Allodi M A, et al. Coherent two-dimensional terahertz-terahertz-Raman spectroscopy[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2016, 113(25): 6857-6861.
- [35] 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.
- [36] Zhang L H, Huang Y Y, Zhu L P, et al. Polarized THz emission from in-plane dipoles in monolayer tungsten disulfide by linear and circular optical rectification[J]. *Advanced Optical Materials*, 2019, 7(6): 1801314.
- [37] Huang Y Y, Yao Z H, He C, et al. Terahertz surface and interface emission spectroscopy for advanced materials[J]. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 2019, 31(15): 153001.
- [38] Kiwa T, Tonouchi M, Yamashita M, et al. Laser terahertz-emission microscope for inspecting electrical faults in integrated circuits[J]. *Optics Letters*, 2003, 28(21): 2058-2060.
- [39] Jacobs K J P, Murakami H, Murakami F, et al. Characterization of through-silicon vias using laser terahertz emission microscopy[J]. *Nature Electronics*, 2021, 4(3): 202-207.
- [40] Klarskov P, Kim H, Colvin V L, et al. Nanoscale laser terahertz emission microscopy[J]. *Acs Photonics*, 2017, 4(11): 2676-2680.
- [41] Li P Y, Liu S J, Liu Z, et al. Laser terahertz emission microscopy of nanostructured spintronic emitters[J]. *Applied Physics Letters*, 2022, 120(20): 201102.
- [42] Park S G, Melloch M R, Weiner A M. Analysis of terahertz waveforms measured by photoconductive and electrooptic sampling [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1999, 35(5): 810-819.
- [43] 吴晓君, 任泽君, 孔德胤, 等. 砷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.
- [44] Bodrov S B, Murzanev A A, Sergeev Y A, et al. Terahertz generation by tilted-front laser pulses in weakly and strongly nonlinear regimes[J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 103(25): 251103.
- [45] Hebling J, Hoffmann M C, Hwang H Y, et al. Observation of nonequilibrium carrier distribution in Ge, Si, and GaAs by terahertz pump-terahertz probe measurements[J]. *Physical Review B*, 2010, 81(3): 035201.

- [46] Dong T, Li S X, Manjappa M, et al. Nonlinear THz-nano metasurfaces[J]. *Advanced Functional Materials*, 2021, 31(24): 2100463.
- [47] Ma Z Z, Li P Y, Chen S, et al. Optical generation of strong-field terahertz radiation and its application in nonlinear terahertz metasurfaces[J]. *Nanophotonics*, 2022, 11(9): 1847-1862.
- [48] 许涌, 张帆, 张晓强, 等. 自旋电子太赫兹源研究进展[J]. *物理学报*, 2020, 69(20): 200703.
- Xu Y, Zhang F, Zhang X Q, et al. Research advances in spintronic terahertz sources[J]. *Acta Physica Sinica*, 2020, 69(20): 200703.
- [49] Wang B, Shan S Y, Wu X J, et al. Picosecond nonlinear spintronic dynamics investigated by terahertz emission spectroscopy [J]. *Applied Physics Letters*, 2019, 115(12): 121104.

Lithium Niobate Strong-Field Terahertz Nonlinear Time-Domain Spectroscopy System

Cai Jiahua¹, Zhang Baolong², Geng Chunyan¹, Hao Sibó³, Chen Sai^{1,4}, Wu Xiaojun^{1,4*}

¹*School of Electronic and Information Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China;*

²*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China;*

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

⁴*Beijing Key Laboratory for Microwave Sensing and Security Applications, Beihang University, Beijing 100191, China*

Abstract

Objective The strong-field terahertz (THz) time-domain spectroscopy is fundamental in strong-field THz science, technology, and applications. Strong-field THz time-domain spectroscopy is also indispensable in many fields including materials, physics, chemistry, and biology, which involve strong nonlinear interactions between strong-field THz and matter. However, the unavailability of a high-field free-space THz source with high repetition rate, excellent beam quality, and high stability hinders its development. In this study, we designed and independently developed a highly integrated strong-field THz nonlinear time-domain spectroscopy system based on a lithium niobate (LN) strong-field THz source. The proposed system is driven by a kilohertz femtosecond laser amplifier and exhibits the functions of a strong-field THz nonlinear spectrum, THz-pump THz probe (TPTP), strong-field THz-pump optical probe, optical-pump THz probe (OPTP), and THz emission spectrum. This highly integrated strong-field THz nonlinear time-domain spectroscopy system is a powerful tool for analyzing the nonlinear effects of strong-field THz waves.

Methods We developed a strong-field THz nonlinear time-domain spectroscopy system. We employed a Ti : sapphire femtosecond laser amplifier that provided laser pulses with a center frequency of 800 nm, pulse duration of 35 fs, repetition rate of 1 kHz, and maximum pump power of 5 mJ. The laser input to the system was split using an 80:20 beam splitter. The transmitted beam (80%) was employed as a pump beam to generate strong-field THz waves from the LN crystal through optical rectification based on the tilted pulse front technique. The strong-field THz waves generated by the LN crystal was used to induce and probe the nonlinear effects. The residual 20% femtosecond laser energy was divided into three beams: the first for the optical pump, the second for generating a weak-field THz probing beam in a ZnTe emission crystal (ZnTe 1), and the third for electro-optic sampling of both the pump and probing THz temporal waveforms. Three delay lines were employed to synchronize the strong-field THz, optical pump, and electro-optic sampling. THz temporal waveforms were detected by an electro-optic sampling system consisting of a ZnTe crystal, quarter-wave plate, Wollaston prism, and two photodiodes for the coherent detection of THz pulses based on the principle of the electro-optic effect.

Results and Discussions In this work, the study on LN strong-field THz nonlinear spectroscopy is summarized as follows. First, for the strong-field THz generation and detection system (Fig. 2), the energy conversion efficiency of near-infrared light to THz waves was approximately 0.22%. At the focus of off-axis parabolic mirror 2 (OAP2), the calculated peak electric field can reach 350 kV/cm. The focused THz beam profile can be detected using a THz camera and temperature-sensitive paper. Based on this strong-field THz static nonlinear spectroscopy system, we observed the nonlinear absorption caused by the intervalley scattering of doped silicon induced by strong-field THz using the Z-scan technique (Fig. 3). In addition, the strong-field THz-induced nonlinear transmission self-frequency modulation of the THz nonlinear metasurface further demonstrates the excellent ability of strong-field THz nonlinear spectroscopy in the frequency domain (Fig. 4).

Second, the pump-probe technique is an essential research method for performing strong-field THz nonlinear spectroscopy. The TPTP technique can be achieved by introducing a THz probing beam generated by a ZnTe emission crystal, a coaxially aligned THz pump (generated by LN), and a THz probe, followed by focusing on the sample with an off-axis parabolic mirror (Fig. 5). The THz probing beam was modulated by a chopper with a 500 Hz rotor frequency to obtain a pure probing signal. A THz polarizer was positioned behind the sample with its polarizing orientation perpendicular to the THz pump to further restrict the transmitted THz pump. Using the TPTP technology with a spectral resolution, we observed dynamic changes in the resonant frequency of the THz probe transmission spectra induced by a strong THz field on nonlinear THz metasurface samples. This phenomenon demonstrates that

carrier production in this SRRs sample is caused by the impact ionization of high-resistance silicon.

Third, we realized the OPTP technique by introducing an 800 nm pumping beam. The strong-field THz waves generated by the LN crystal can be used as the probing beam. By adjusting the incident THz field strength, the transmission signal self-modulation induced by the strong-field THz under an 800 nm pump is measured (Fig. 6). For more common OPTP applications, the weak-field THz generated by the ZnTe emission crystal is used as the probing beam, which is primarily used to investigate the ultrafast dynamics of carriers in semiconductors (Fig. 7). By adding a spectral resolution, the photoexcitation dynamics with different frequencies can be analyzed more comprehensively.

Finally, the proposed strong-field THz nonlinear time-domain spectroscopy system exhibits THz emission spectral capability. When stimulated by a femtosecond laser, the induced THz pulse carries a significant amount of physical information in its waveform. Taking the spin THz emission as an example, we demonstrate the flexibility of the system in examining the emission characteristics of the W/CoFeB/Pt thin-film structure (Fig. 8).

Conclusions Strong-field THz nonlinear spectroscopy has become a critical method for studying the nonequilibrium behaviors resulting from strong THz-matter interactions. Based on the self-developed LN strong-field THz nonlinear-time-domain spectroscopy system, various experimental methods of strong-field THz nonlinear spectroscopy were studied and explained, demonstrating the unique ability and essential role of strong-field THz nonlinear spectroscopy in basic research. In addition, with a slight adjustment, the system can also be used for two-dimensional THz spectroscopy, THz electron acceleration, and the THz Kerr effect. This highly integrated and miniaturized THz time-domain spectrometer provides comprehensive research capabilities and potential for nonlinear THz spectroscopy in physics, materials, biology, and engineering applications.

Key words ultrafast optics; strong-field terahertz radiation; lithium niobate; nonlinear spectrum; pump-probe