

激光与光电子学进展

受激声子极化激元与太赫兹光物理(特邀)

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

摘要 70多年前,黄昆先生提出了著名的“黄昆方程”和“声子极化激元”的理念,开启了极化激元研究的先河。迄今为止,黄昆方程作为以中国本土科学家命名的方程,仍然是描述极化激元最好的理论之一。在后续的几十年里,随着超快光学、纳米光学和太赫兹物理与技术的迅速发展,声子极化激元再次成为了研究的热点前沿,表面声子极化激元的相关研究为电磁波的局域和控制带来了新的维度。近几年,南开大学团队发展了黄昆方程,提出了“受激声子极化激元”的概念,逐步打开了声子极化激元参与并主导的光与物质相互作用研究的大门。基于受激声子极化激元的各种铌酸锂片上集成的太赫兹应用也得益于此,取得了长足的发展。本文对声子极化激元和受激声子极化激元等相关概念加以回顾,介绍受激声子极化激元参与下的光与物质的相互作用体系,并以太赫兹非线性光学和铌酸锂片上集成应用等研究为例,阐述声子极化激元和太赫兹物理领域近年来的发展。

关键词 非线性光学; 超快光学; 声子极化激元; 太赫兹; 亚波长光学

中图分类号 O437 文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP232493

Stimulated Phonon Polariton and Terahertz Physics (Invited)

Wu Qiang^{1,2*}, Lu Yao^{1,2}, Ma Ruobin^{1,2}, Xu Xitan^{1,2}, Huang Yibo^{1,2}, Xu Jingjun^{1,2**}¹Key Laboratory of Weak-Light Nonlinear Photonics, Ministry of Education, TEDA Applied Physics Institute and School of Physics, Nankai University, Tianjin 300457, China;²Shenzhen Research Institute of Nankai University, Shenzhen 518083, Guangdong, China

Abstract More than 70 years ago, Prof. Huang Kun proposed the famous “Huang’s equations” and the concept of “phonon polariton”, marking the beginning of polariton research. So far, the Huang Kun equation, named after a local Chinese scientist, remains one of the best theories for describing polaritons. In the following decades, with the rapid development of ultrafast optics, nanooptics, and terahertz physics and technology, phonon polaritons have once again become a hot research frontier. The related research on surface phonon polaritons has brought new dimensions to the localization and control of electromagnetic waves. In recent years, the team at Nankai University has developed the Huang’s equations and proposed the concept of “stimulated phonon polaritons”, gradually opening the door to the study of light matter interactions in which phonon polaritons participate and lead. Various terahertz applications integrated on lithium niobate chips based on stimulated phonon polaritons have also benefited from this and achieved significant development. This article will review the relevant concepts of phonon polaritons and stimulated phonon polaritons, introduce the interaction system between light and matter under the participation of stimulated phonon polaritons, and take research on terahertz nonlinear optics and lithium niobate chip integration as examples to explain the recent development of phonon polaritons and terahertz physics.

Key words nonlinear optics; ultrafast optics; phonon polariton; terahertz; subwavelength optics

1 引言

20世纪中叶,黄昆先生在研究立方的双原子极性

晶体晶格的光学振动模式时,曾指出在此之前的晶格动力学研究中存在的两个关键性问题:一是采用硬离子模型无法准确地描述由于正负离子光学振动伴随的

收稿日期: 2023-11-13; 修回日期: 2023-12-12; 录用日期: 2023-12-15; 网络首发日期: 2023-12-25

基金项目: 国家自然科学基金(62205158, 11974192)、中国博士后科学基金(2022M711709)、激光与物质相互作用国家重点实验室基金(SKLLIM2101)、高等学校学科创新引智计划(111计划)(B23045)、长江学者和创新团队发展计划(IRT_13R29)

通信作者: *wuqiang@nankai.edu.cn; **jjxu@nankai.edu.cn

电极化场对晶格光学振动自身的影响；二是早期研究者未能认识到长程库仑作用对晶格光学振动的影响，因而得出了一些错误的结论。根据黄昆先生的思考，一方面光学振动的动力学研究要包含长程库仑作用力，其振动的恢复力，既依赖于光学位移又依赖于宏观电场；另一方面，决定宏观电场的电极化，同样也是既依赖于光学位移，又依赖于宏观电场。由此黄昆先生提出了著名的黄昆方程，以确立光学位移 \mathbf{W} 、宏观电场 \mathbf{E} 与电极化场 \mathbf{P} 三者之间的关系，即

$$\begin{cases} \ddot{\mathbf{W}} = b_{11}\mathbf{W} + b_{12}\mathbf{E} \\ \mathbf{P} = b_{21}\mathbf{W} + b_{22}\mathbf{E} \end{cases} \quad (1)$$

在这组方程中，光学位移 \mathbf{W} 正比于正负离子的位移之差，具体而言

$$\mathbf{W} = \sqrt{Nm}(\boldsymbol{\mu}_+ - \boldsymbol{\mu}_-), \quad (2)$$

式中： N 是晶格原胞密度； $m = \frac{M_+ + M_-}{M_+ M_-}$ 为正负离子质量 (M_+ 和 M_-) 的约化质量； $\boldsymbol{\mu}_+$ 和 $\boldsymbol{\mu}_-$ 分别为正负离子的位移。根据能量守恒的要求，可知 $b_{12} = b_{21}$ 。在简谐近似下：考虑该方程的高频极限，可知 $b_{22} = \epsilon_0(\epsilon_\infty - 1)$ ， ϵ_0 为真空极化率， ϵ_∞ 为低频极限的相对介

电常数；考虑低频极限，可知 $b_{22} = \frac{b_{12}b_{21}}{\omega^2 + b_{11}} = \epsilon_0(\epsilon_0 - 1)$ ， b_{11} 表示晶格振动的弹性恢复力， ϵ_0 为高频极限的相对介电常数。至此可以得到所有耦合系数的取值 $b_{11} = -\omega_0^2$ ， $b_{12} = b_{21} = \omega_0\sqrt{\epsilon_0(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}$ ， $b_{22} = \epsilon_0(\epsilon_\infty - 1)$ ，其中 ω_0 表示晶格振动的本征频率。

求解黄昆方程，便可以得到声子极化激元（“极化激元”一词由美国科学家 J. Hopfield 所提出的“polariton”一词翻译而来，其本意是指由极化粒子与光子耦合而来的新粒子，属于凝聚态物理中元激发或准粒子家族中的一类。声子极化激元也曾被翻译为“电磁耦子”，本文统一使用声子极化激元）横波和纵波的频率，其中纵波

$$\omega_L = \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\epsilon_\infty}} \omega_0. \quad (3)$$

这一结果与 LST (Lyddano-Sachs-Teller) 关系一致，说明纵波的频率是平行于横轴的一条直线，而横波的频率则与波矢相关

$$\frac{c^2 k^2}{\omega_T^2} = \epsilon_\infty - \frac{\omega_0^2(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)}{\omega^2 - \omega_0^2}. \quad (4)$$

由此正好得到声子极化激元的横波满足的色散关系，如图 1 所示。

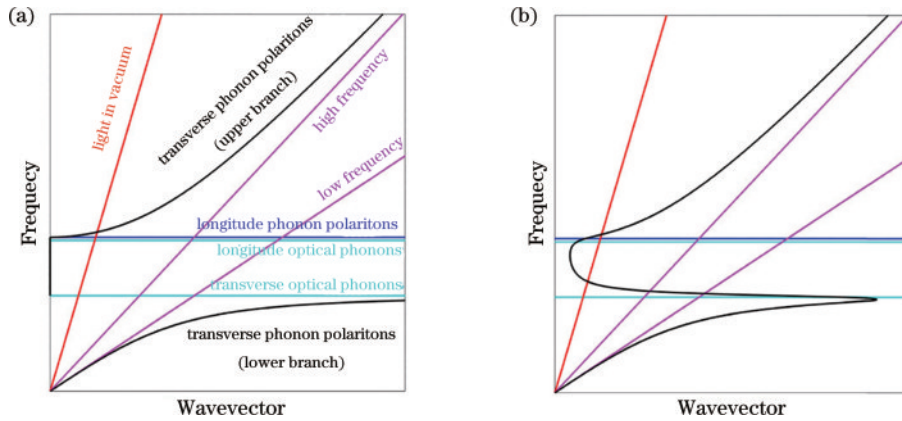


图 1 只具有一个光学模式的立方（一维）离子晶格中的声子极化激元色散。(a) 不考虑耗散；(b) 考虑材料吸收引起的耗散
Fig. 1 Phonon polariton dispersion in a cubic ion lattice (one-dimensional) with one optical mode. (a) No dissipation; (b) dissipation caused by material absorption

在没有耗散的情况下，声子极化激元的纵波频率与波矢无关，分布在纵光学声子的附近，而声子极化激元的横波则分为两支，上支的频率均高于纵波，下支的频率均低于横光学声子。两支之间存在一个“间隙”，在这个间隙中，不允许相应频率的格波存在并传输，入射波的频率如果在该频率间隙中，将会被晶格全反射。当耗散存在时，纵波除了频率略微偏移之外，几乎没有任何其他的变化。而横波的变化就比较大了，原本分开的上下两支已经连在了一起，全反射带隙也就随之消失了。值得一提的是，在图 1 中，光学声子的色散近乎一条完全局域化的线。然而实际上，光学声子并非局域，晶格中光学声子的横波传输速度大约 3000 m/s，纵波大约为 5000 m/s。然而与光速相比，它们却远远

小得多，因此相对于电磁波的传输，它们的传输也就近乎局域了。

由此可见，声子极化激元广泛地存在于极性晶体中，对于极性晶体的性质具有极大的影响。这里需要指出，这种热激发的声子极化激元在极性晶体中呈现一种稳态的存在与分布，其强弱与晶体的极性和温度有关，具有全局性和自发性的特点，对离子晶体材料的红外光谱学性质和热容具有重要的影响^[1-2]。而即便是在绝对零度附近，假定晶体中的正负离子都待在原地不动，此时整个晶体系统依然是一个声子极化激元系统。与只传递声子作用的弹性机械波不同，声子极化激元的传递和输运是以电磁波的形式存在的，因此即便这个系统处于绝对零度的低能状态，正负离子之

间依然存在电磁作用。而一旦晶体中的某个或某些离子被激发,这种激发态就会迅速以耦合波的形式向周围扩散,形成一种以光带声的传输形式。

1958年,Hopfield等^[3]研究光子与激子相互耦合时正式对“极化激元(polariton)”进行命名,之后在1965年他和Henry^[4]采用角度分辨拉曼散射的实验方法,首次在磷化镓(GaP)晶体中证实了声子极化激元的存在,也从实验上证明了黄昆方程的正确性。20世纪80年代以后,超快激光出现,声子极化激元的发展也进入新的时期。美国贝尔实验室于1984年在钽酸锂晶体中观察了太赫兹声子极化激元的传输^[5]。1999年,美国麻省理工学院Keith Nelson教授的课题组^[6]开发出了一套对声子极化激元进行成像的系统。这些工作都为后续晶体声子极化激元的研究和发展打下了必要的基础。

2 非线性黄昆方程与受激声子极化激元

前文中提到,即使在绝对零度,晶体中所有离子都处于其基态平衡位置,声子极化激元系统也与其他系统有本质的区别。此时,当外界光场进入时,体系状态就会在很短的时间内改变为一个局域激发系统,体系除了同时受到晶格弹性恢复力和库仑力之外,还会受到外界驱动力的影响。一般而言,当高强度飞秒激光脉冲或太赫兹波入射到晶体中时,会在晶体中产生大量受激、相干的声子极化激元。

由于多数晶体中声子极化激元的频率位于太赫兹波段,因此当外界太赫兹波进入晶体时,可以直接与晶格中的光学声子发生耦合,激发出声子极化激元。当飞秒激光进入晶体后,根据能量匹配原则,激光脉冲无法直接激发离子,而是在晶格中发生一种受激拉曼散射,与传统受激拉曼散射不同,这种受激拉曼散射由飞秒激光激发,习惯上称为“冲击受激拉曼散射”(ISRS)^[7-8]。冲击受激拉曼散射发生后,晶体中的正负离子辐射大量相干的声子极化激元,同时释放斯托克斯光子。在此过程中,由于受激拉曼散射可以级联,因此“冲击受激拉曼散射”允许入射激光通过释放高阶斯托克斯光子产生更多的声子极化激元,这样也从理论上允许了从超快光子到声子极化激元100%量子效率的突破。近年来,太赫兹科学与超快激光的发展极大地推动了声子极化激元研究的发展,最近兴起的强场太赫兹研究也从实验上实现了100%量子效率的突破^[9-10]。

尽管早期的许多研究都已经使用了超快激光在各类离子晶体中产生太赫兹波或声子极化激元,然而彼时研究者们还并未意识到这类声子极化激元的独特性^[7-8,11-13]。2021年,南开大学团队研究发现,由飞秒激光在钽酸锂晶体中产生的声子极化激元对太赫兹波的非线性性质具有极大的影响^[14]。与此同时,国内外许

多单位也都发现,利用太赫兹场在晶体中调控光与物质相互作用,可以实现对发光、铁电/铁磁相变以及各种非线性效应的调控^[15-18]。随后的一年里,我们进一步研究了此类声子极化激元的性质,并发现它对光与物质相互作用具有很大影响,这一影响不仅体现在太赫兹波段,更体现在可见和近红外波段^[19]。为了凸显出此类声子极化激元的独特性,并与黄昆先生提出的声子极化激元相区分,本文将由外场激发、相干产生的晶格激发态称为“受激声子极化激元”。与之相对,由热激发形成的非相干的晶格激发态称之为“自发声子极化激元”。

数学上可以使用非线性黄昆方程描述受激声子极化激元^[14]。一般而言,非线性黄昆方程具有以下形式

$$\begin{cases} \ddot{\mathbf{x}} + \gamma\dot{\mathbf{x}} + \omega_0^2\mathbf{x} = -\mathbf{A}\mathbf{x}^2 + (Nm)^{-1/2}b_{12}\mathbf{E} + \mathbf{E}_{\text{ex}}q/m \\ \mathbf{P} = (Nm)^{1/2}b_{21}\mathbf{x} + \epsilon_0[\epsilon_\infty - 1]\mathbf{E} \end{cases}, \quad (5)$$

式中: \mathbf{x} 表示离子的宏观位移; \mathbf{P} 表示宏观极化; \mathbf{E} 表示外界电场; γ 表示离子的振动耗散; ω_0 表示离子的本征频率; $\mathbf{E}_{\text{ex}}\frac{q}{m}$ 表示离子在外界电场中受到的驱动力; $-\mathbf{A}\mathbf{x}^2$ 表示非线性回复力;耦合项 $(Nm)^{-1/2}b_{12}\mathbf{E}$ 和 $(Nm)^{1/2}b_{21}\mathbf{x}$ 是声子极化激元的特征项。

当此方程描述三维晶体时, \mathbf{x} 、 \mathbf{E} 、 \mathbf{P} 均为 1×3 的列矢量,非线性恢复力系数 \mathbf{A} 为一个 3×3 的二阶张量;在考虑中心对称晶体时,回复力展开式中最低阶的非线性项应为 $-\mathbf{B}\mathbf{x}^3$,其中 \mathbf{B} 为一个三阶张量。然而在很多简化情况下,往往只需要考虑一维情形,这时候非线性恢复力系数 \mathbf{A} 、 \mathbf{B} 就可以简化为标量 α 、 β 了。此时方程也更加简单,而处理方式上无太大差别,因此本文后续将以一维简化情形为例进行阐述。

这里需要特殊说明的是,在黄昆方程(1)中,为了保证方程数学形式的对称美感,曾引入了一个光学位移矢量 \mathbf{W} ,它实际上对应为离子的约化位移密度。而在非线性黄昆方程(5)中,由于驱动力是非均匀的,因此需要将光学位移矢量还原为离子约化位移 $\mathbf{x} = \boldsymbol{\mu}_+ - \boldsymbol{\mu}_-$ 。方程中 b_{12} 和 b_{21} 前的系数 $(Nm)^{-1/2}$ 和 $(Nm)^{1/2}$ 则是为了保证方程量纲正确而引入的。

由于受激声子极化激元是局部产生的,产生后会立即由产生位置向周围传输,而要研究这个过程,则需要将方程(5)与介质中的麦克斯韦方程组联立。采用光学上对非谐振子方程的处理方法^[2],对方程(5)取时间简谐近似,即假设 x 与 E 的时间演化为 $x(t) = x_0 e^{-i\omega t}$ 和 $E(t) = E_0 e^{-i\omega t}$,其中 x_0 和 E_0 与 t 无关, ω 为太赫兹驱动光场 E_{ex} 的频率。此时结合麦克斯韦方程组可消去宏观极化 P 。在低频情况下,假设电场的空间传输因子可以表述为 $e^{i\sqrt{\epsilon_0}kr}$,同时代入 b_{12} 和 b_{21} 的值,可以得到 $(Nm)^{-1/2}b_{12}E = \omega_0^2 x_0$ 。此时方程(5)

可以简化为

$$-\omega^2 x + i\gamma\omega x = -ax^2 + E_{\text{ex}} \frac{q}{m}. \quad (6)$$

方程(6)与非线性德鲁德(Drude)方程的形式相似,用于描述声子极化激元的非线性。这一方程揭示出声子极化激元也是离域的,与德鲁德方程所描述的电子离域体系类似,同样的结论也可以从声子极化激元的色散曲线图中看出。由此可以证明,非线性黄昆方程对于声子极化激元的描述是较为准确的。

受激声子极化激元与自发产生的声子极化激元相比,具有离域性与相干性,同时能与晶格产生更加强烈的相互作用,这种相互作用建立在晶格原有的离子-电子耦合之上,产生了非线性耦合,这对于非线性光物理学的研究具有重要的意义。

3 声子极化激元与非线性光学的发展

非线性光学的历史由来已久,而要考察受激声子极化激元对于非线性光物理学的影响,就需要深入到其物理本质,探索非线性光学效应的起源。

3.1 晶体材料中光学非线性与受激声子极化激元非线性

光学非线性效应源于材料对光场的非线性响应。一般而言,当光场 \mathbf{E} 入射到一个非线性介质时,它产生的极化场 \mathbf{P} 并非简单正比于电场,而是对应一个复杂的数学函数 $f(\mathbf{E})$,作泰勒展开后可以得到

$$\mathbf{P} = f(\mathbf{E}) = \chi^{(1)}\mathbf{E} + \chi^{(2)}\mathbf{E}\mathbf{E} + \chi^{(3)}\mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E} + \dots, \quad (7)$$

式中:第一项对应线性光学的极化;第二项对应二阶非线性光学响应,包含二次谐波、和频、差频、光整流和泡克耳斯效应等;第三项对应三阶非线性光学响应,包含三次谐波、四波混频、相位共轭、双光子吸收和克尔效应等;后续还包含更高阶的非线性光学效应。

非线性光学在激光器出现之前的发展极为缓慢,这是因为常见光学材料的非线性效应系数较低,在弱光源下无法体现出非线性。一般而言,对于高阶非线性效应来说,其阶数每上升一阶,非线性极化率平均下降 11~12 个数量级^[20]。为了提升光学非线性效应,多年来研究者花了大量的精力来提升入射光的强度,从激光器的诞生到飞秒激光、阿秒激光的发展,然而一方面,激光技术发展的经济成本呈现指数形式增加,另一方面,激光功率密度增强所带来的非线性晶体损伤使得获取强非线性光学效应极为艰难。

近些年来,材料科学的发展为我们带来了诸如石墨烯、氮化硼、钙钛矿等性质优异的材料,也带来了人工构造超材料和超表面的技术方案。新兴半导体材料中电子的高迁移率可以增强非线性极化率,从而实现强非线性效应,这在诸多研究中已有体现^[21-25]。不过,这些研究主要聚焦于使用频率高于近红外波段的高频电磁波来激发材料中的非线性。在这种条件下,只有电子的非线性能够被激发,而离子由于质量过大而无

法响应高频电磁波,因此使用高频电磁波实现强非线性效应面临一定的效率上限。而在超表面和超材料领域,通过增加入射光泵浦强度以及利用微结构将入射光限制在较小的区域来增强光学非线性已经取得了一些成果^[26-34]。这些方法主要着眼于增强泵浦强度来获得强光学非线性,难以突破材料自身光学损伤阈值的瓶颈。因此,想要获得可用的弱光强非线性光学效应,还需在传统晶体材料中探索新的机制。

从材料非线性极化角度而言,传统晶体材料主要依靠离子非线性和电子非线性。离子与电子之间还存在着复杂的相互作用,在这些相互作用之下,离子在其平衡位置进行小幅度的振动,但电子由于受到复杂的周期性电场作用而遵循布洛赫波函数所描述的概率密度分布在晶体中。晶体中的电子主要分为局域在离子周围的价带及以下的电子和离域的导带电子,由于价带及以下的电子受到离子较强的束缚,因此可将它们和离子视为一个整体。

接下来分别考虑导带电子和离子。电子的静止质量大约为 9.1×10^{-31} kg,对于外界电场的极化响应时间在亚飞秒至飞秒量级;质子和中子的质量为电子的 1800 多倍,大多数离子晶体中的离子质量约在 10^{-26} kg 的数量级上,对于外界电场的极化响应时间在亚皮秒至皮秒量级。由此可见,晶体中的导带电子对于外加电场的响应速度非常快,自身无法产生显著的非线性极化。对于离子而言,离子晶体中任意离子在一外界电场中被极化后引起的恢复力 F ,可以由离子势能 $U(r)$ ^[35] 的表达式得出

$$\begin{cases} U(r) = \frac{1}{2} \left(-\frac{\alpha q^2}{4\pi\epsilon_0 r} \right) + \frac{B}{r^{N_b}} \\ F = -\frac{dU(r)}{dr} = \frac{1}{2} \left(-\frac{\alpha q^2}{4\pi\epsilon_0 r^2} \right) + \frac{BN_b}{r^{N_b+1}} \end{cases}, \quad (8)$$

式中: r 为离子位移; B 是一个与 r 无关的常数; α 为马德隆常数,用于描述离子在晶体中的总电势能,与晶体的晶型有关; N_b 为波恩指数,与离子的电子构型有关。

将方程(8)中的恢复力 F 写成离子偏离平衡位置位移 δr (极化位移) 的函数,并对其在平衡位置处做幂级数展开,可以得到

$$F(\delta r) = F(0) + F'(0)\delta r + \frac{1}{2}F''(0)\delta r^2 + \frac{1}{6}F'''(0)\delta r^3 + \dots. \quad (9)$$

从式(9)可以看出,当离子晶体中的离子与外界电场相互作用而被极化后,会产生线性恢复力和高阶的非线性恢复力。基于这一结果,如果在洛伦兹简谐振子方程中加入非线性回复力,就可以解出相应的非线性极化。

根据以上的分析可以看出,离子晶体的非线性效应来源于离子的非线性极化。但由于离子的质量较大,对外界电场的响应速度较慢,因此与高频电磁波相

相互作用时,离子的非线性极化无法直接对高频电磁波产生反作用,但可以通过耦合将自身的非线性极化作用于电子来间接传递这种非线性相互作用,产生较为明显的非线性现象。

从以上的模型可以看出,非线性晶体如果想要产生较强的非线性效应,需要使离子对电子的束缚效果处于一个“适度”的范围,在保证电子不因受到过强的束缚而产生较强的极化场的同时,又要保证电子与离子具有足够强的耦合作用来传递非线性极化。在这一方面,石墨烯、二硫化钨等二维半导体在电子迁移率方面体现出了优势,它们能够在同样的外加光场下产生更强的非线性电子极化场,从而具有更高的非线性系数,而金属材料表面自由电子与离子的耦合太过微弱,无法传递离子的非线性极化,因而在金属材料的表面无法产生强非线性。

因此,在高频电磁波段,如果想要得到更高的非线性系数,只能对非线性材料的电子态进行选择 and 修饰。对于离子的影响只能通过使用更强的驱动光场来实现,但这受到材料烧蚀阈值的限制,同时无法提高非线性

极化效率。如果想要改变离子的状态从而提升非线性效率,需要使用更低频的驱动光场。根据上文的计算,离子对外界电场的响应时间为亚皮秒至皮秒量级。因此,若采用更长周期的驱动光场,晶体中离子的非线性极化可以直接反作用于光场,更显著地体现出离子非线性,从而提升晶体的非线性效率。通过计算可以得到,这样的驱动光场处于太赫兹以及更低频的波段。在太赫兹波段,驱动光场可直接与离子发生共振,激发受激声子极化激元。在这一条件下,离子的非线性位移可被声子极化激元直接驱动而提升数个数量级,从而显著地增强非线性极化率,实现太赫兹波段的巨非线性极化,使太赫兹波的非线性研究进入全新的阶段。

3.2 受激声子极化激元非线性的实验结果

从离子振动方程的最终形式看出,声子极化激元具有很高的迁移率,这意味着非线性极化和非线性效应的增强。南开大学团队借助受激声子极化激元实现了太赫兹波的巨非线性效应^[14]。如图 2(a)所示,利用光栅倾斜波前技术,使得用于泵浦产生太赫兹波的飞秒激光同时与铌酸锂亚波长波导中太赫兹波的 TE₀ 和

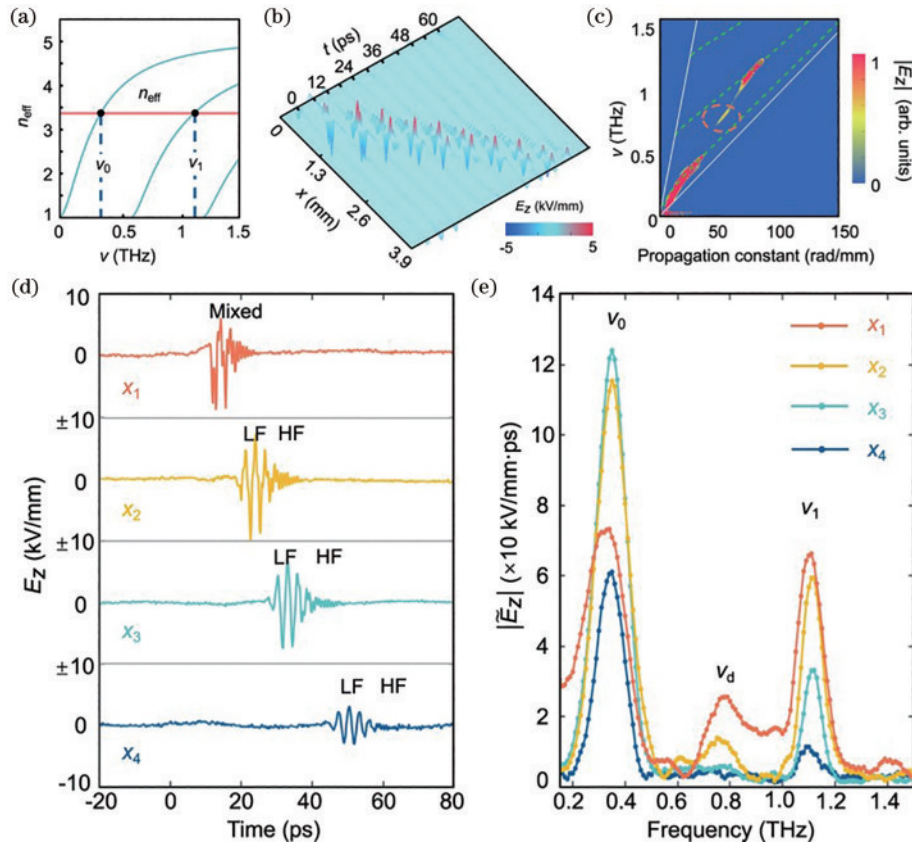


图 2 非线性太赫兹波产生的实验结果^[14]。(a)速度匹配的选择;(b)太赫兹波在铌酸锂波导中时空传播的实验观察;(c)太赫兹波的颜色散关系,差频信号由虚线圆圈标记(d)在相对于太赫兹波激发区域 $X_1 = 1.18 \text{ mm}$, $X_2 = 1.82 \text{ mm}$, $X_3 = 2.39 \text{ mm}$ 和 $X_4 = 3.44 \text{ mm}$ 处太赫兹波的电场振荡;(e)频率 ν_0 和 ν_1 以及差频信号在四个位置处的傅里叶光谱

Fig. 2 Experimental results of nonlinear terahertz wave generation^[14]. (a) Selection of speed matching; (b) experimental observation of spatiotemporal propagation of terahertz waves in lithium niobate waveguides; (c) dispersion relationship of terahertz waves, with the difference frequency signal marked by a dashed circle; (d) oscillation of terahertz waves in the excitation region $X_1 = 1.18 \text{ mm}$, $X_2 = 1.82 \text{ mm}$, $X_3 = 2.39 \text{ mm}$, and $X_4 = 3.44 \text{ mm}$; (e) frequency ν_0 , ν_1 , and Fourier spectra of differential frequency signals at four positions

TE₁模式的相位匹配,从而能够同时产生中心频率分别为 $\nu_0 = 0.35$ THz 和 $\nu_1 = 1.11$ THz 的窄带太赫兹脉冲,由此可以观测到这两个模式的差频过程。其演化过程和二维傅里叶频谱分别如图 2(b)和(c)所示。可以看到,TE₀和 TE₁模式的差频信号在 $\nu_d = \nu_1 - \nu_0 = 0.76$ THz附近,由虚线圆圈标注。

由于此过程中用于产生非线性效应的激发光和产生的非线性信号都位于太赫兹波段,因此其非线性效应受到了受激声子极化激元的增强。通过对实验数据进行建模分析,可以得到这一过程中的二阶非线性极化率为 $|\chi^{(2)}| > 1.58 \times 10^{-6}$ m/V,这一数值比可见光至少高 5 个数量级,比微波至少高 3 个数量级。尽管借助倾斜波前的方案,实现了两个激发模式的相位匹配,然而由于它们的群速度存在差异,因此可以观察到明显的走离效应,如图 2(d)所示。与之相应,各个频率的相对强度由于波导损耗、非线性产生以及走离效应的共同存在也随之发生了相应的改变,如图 2(e)所示。

对非线性黄昆方程(5)取实验参数,即可解出相应的理论结果。对于铌酸锂晶体,上述差频产生过程对

应的二阶非线性极化率理论值为 $|\chi_{pp}^{(2)}| = 1.70 \times 10^{-5}$ m/V,与实验结果相吻合。若不考虑受激声子极化激元的影响,可取系数 $b_{12} = b_{21} = 0$,则得到非耦合情况下离子贡献的非线性极化率为 $|\chi_{ion}^{(2)}| = 8.0 \times 10^{-11}$ m/V,远小于实验结果,从而证明了受激声子极化激元对于离子态的调控和非线性效应的增强。

对于高频光,其非线性效应主要源于电子非线性。考虑到电子非线性源于电子与离子之间的相互作用,而受激声子极化激元可以通过离子-电子耦合来间接调制电子态,从而实现对电子态的调制和高频光的非线性的增强。2022年,我们团队还利用光栅倾斜波前技术证明了受激声子极化激元能够增强铌酸锂在近红外波段的倍频效应^[19]。如图 3(a)所示,飞秒激光聚焦铌酸锂晶体后将产生二次谐波信号,利用倾斜波前的方法可以区分出受激声子极化激元的贡献。实验结果如图 3(b)所示,两个极值分别是飞秒激光的强功率密度和声子极化激元引起的二次谐波效应。根据计算,受激声子极化激元使得铌酸锂晶体在红外 800 nm 波段的二阶非线性增强了约 4.8×10^5 倍。二次谐波信号强度的对比如图 3(c)所示。

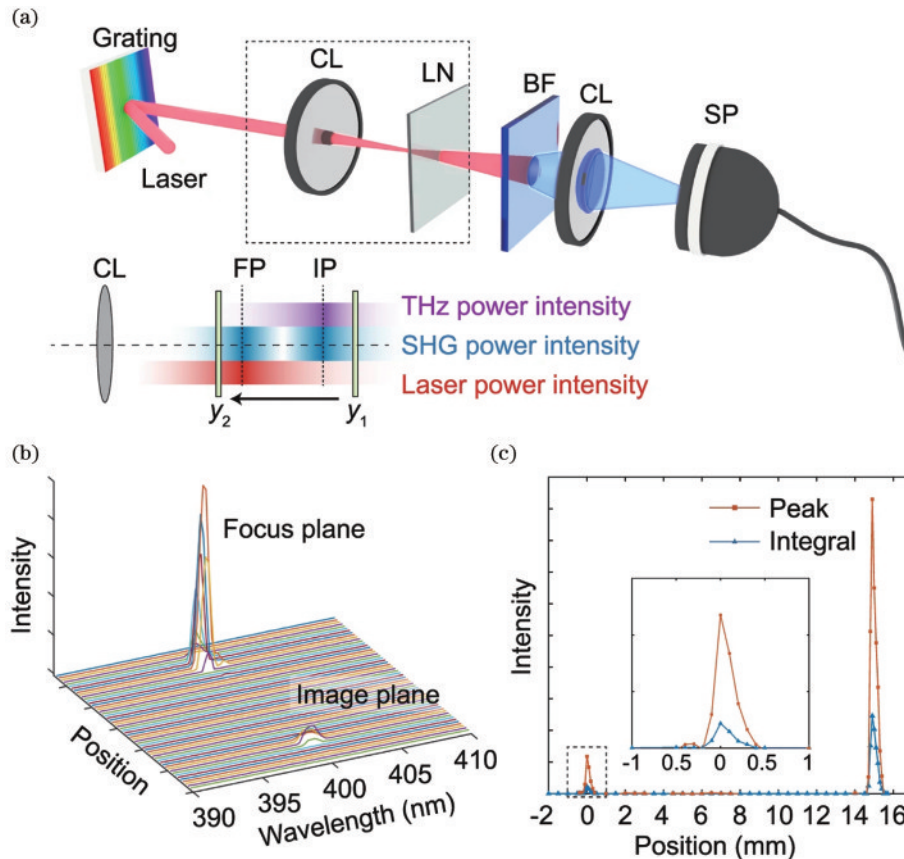


图 3 受激声子极化激元介导的光-物质相互作用对近红外激光脉冲二次谐波产生的增强^[19]。(a)实验装置示意图;(b)铌酸锂晶体移动过程中的二次谐波频谱;(c)铌酸锂晶体移动过程中二次谐波信号的峰值强度和总能量

Fig. 3 Enhancement of second harmonic generation in near-infrared laser pulses by light matter interaction mediated by stimulated phonon polaritons^[19]. (a) Schematic diagram of experimental equipment; (b) second harmonic spectrum during the movement of lithium niobate crystals; (c) peak intensity and total energy of second harmonic signals during the movement of lithium niobate crystals

在微腔中,受激声子极化激元还可以使晶体中原本非相干的离子振荡变为相干振荡,从而使电磁振荡损耗降低,利用这一点还可以实现晶体微腔的损耗调

制。南开大学团队通过在铌酸锂平板波导上设计并制作光子晶体微腔,证明了声子极化激元可以使得微腔 Q 值提升大约 50%。相应的设计与结果如图 4 所示。

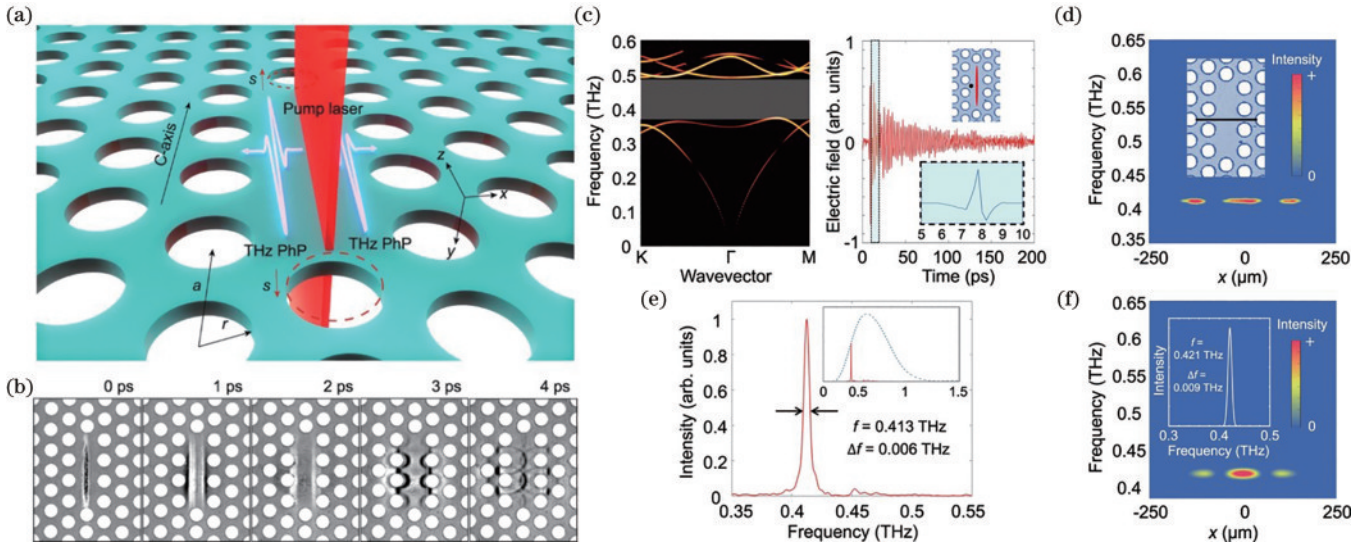


图 4 微腔中受激声子极化激元的实验结果^[19]。(a)泵浦激光与微腔的实验配置示意图,其中晶格常数 $a = 170 \mu\text{m}$, $r = 50 \mu\text{m}$, $s = 0.15r$; (b)微腔中受激声子极化激元的时间演化; (c)铌酸锂光子晶体的能带与微腔中参考点的电场振荡; (d)微腔中插图处的光谱信息; (e)微腔中局域受激声子极化激元的光谱信息,插图为宽带和局域受激声子极化激元的光谱对比; (f)沿着微腔中参考线和参考点的光谱

Fig. 4 Experimental results of stimulated phonon polaritons in microcavity^[19]. (a) Schematic diagram of experimental configuration of pump laser and microcavity, where lattice constant $a = 170 \mu\text{m}$, $r = 50 \mu\text{m}$, $s = 0.15r$; (b) time evolution of stimulated phonon polaritons in microcavities; (c) energy band of lithium niobate photonic crystal and the electric field oscillation of the reference point in the microcavity; (d) spectral information at the lines shown in the illustration in the microcavity; (e) spectral information of local stimulated phonon polaritons in the microcavity is illustrated as a comparison of the spectra of broadband and local stimulated phonon polaritons; (f) spectra along the reference line and reference point in the microcavity

4 片上受激声子极化激元的产生、探测与控制

根据声子极化激元的特点,实验上可以采用外场来激发受激声子极化激元。已知,利用强场太赫兹波辐照铌酸锂等离子晶体,可以产生受激声子极化激元。然而目前受限于太赫兹源的发展,多采用超快激光在非线性离子晶体中产生太赫兹波^[36-39],再与晶体中光学声子发生耦合,激发受激声子极化激元。以铌酸锂晶体为例,飞秒激光在铌酸锂晶体中的传输速度($n_e = 2.2$)远大于太赫兹波的传输速度($n_o = 5$),因此直接激发将会造成速度不匹配,从而形成类切连科夫辐射的图样,降低产生效率。为此,诞生了一系列几何配置来处理速度匹配问题。

4.1 片上声子极化激元的产生

4.1.1 片上声子极化激元的宽带激发

首先,本文对常规的不考虑速度匹配的宽带激发情况进行介绍。如图 5 所示,当一束飞秒激光被柱面透镜线聚焦到铌酸锂晶体表面上时,宽带单周期的受激声子极化激元将在晶体内部产生。由于晶体内部泵浦脉冲的群速度显著高于太赫兹声子极化激元的相速

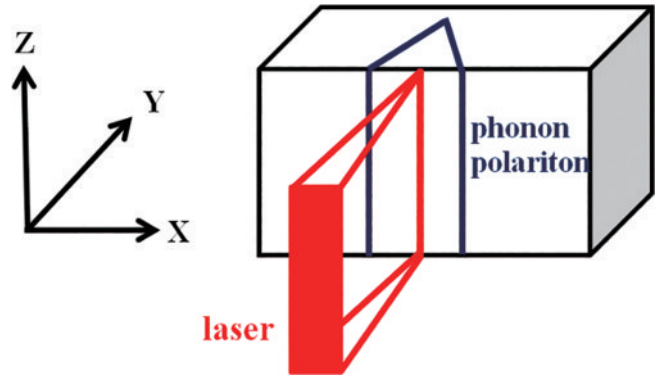


图 5 铌酸锂晶体中受激声子极化激元以切连科夫辐射激发示意图^[37]

Fig. 5 Schematic diagram of stimulated phonon polaritons excited by Cherenkov radiation in lithium niobate crystal^[37]

度,两者之间将产生明显的速度失配,从而使得产生的声子极化激元将以类似切连科夫辐射的形式在晶体内部传输。泵浦激光和生成的声子极化激元的偏振方向均沿着晶体的光轴方向,但两者的传播方向明显不同,为非共线传输。从 XZ 平面上看,声子极化激元波的传播方向几乎垂直于泵浦脉冲。但如图 6 所示,如果将铌酸锂晶体的厚度减小到亚波长量级,铌酸锂晶体将

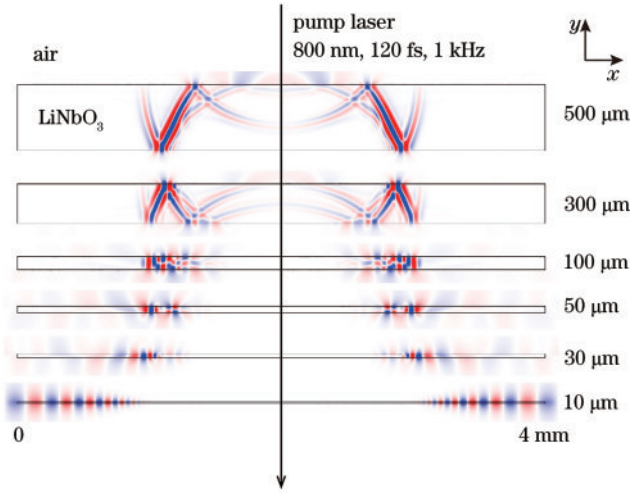


图 6 亚波长波导的强色散抑制切连科夫辐射示意图

Fig. 6 Schematic diagram of strong dispersion suppression Cherenkov radiation in subwavelength waveguides

成为一个良好的太赫兹集成平台,通过晶体表面太赫兹倏逝场与沉积的结构元件之间的相互作用,可以实现对太赫兹波的有效调控。

4.1.2 片上声子极化激元的倾斜波前窄带激发

为了解决速度匹配这一问题,提高声子极化激元的峰值振幅,Hebling 等^[36]提出倾斜泵浦光脉冲波前

的方法被提出,如图 7(a)所示,这一方法通过倾斜泵浦光的脉冲波前使得泵浦光群速度的横向投影与太赫兹波的相速度相匹配,有效地解决了两者之间的速度失配问题,进而使生成的太赫兹波持续保持相干增强状态,大大提高其强度。具体的实验方法如图 7(b)所示,通过闪耀光栅的衍射来倾斜脉冲波前,随后使用柱面透镜将负一级衍射光成像到铌酸锂晶体表面上^[37]。一个超短脉冲由一系列具有不同频率的平面波分量组成,当该超短脉冲通过闪耀光栅后,由于角色散的存在,不同单色平面波分量将具有不同的相速度。而任意时刻的脉冲波前皆是由不同频率分量光强最大点组成的波面,因此,在超短脉冲的后续传播过程中,脉冲波前将不与传播方向垂直,而是与传播方向垂直面成一个倾角,也就是产生了脉冲波前的倾斜^[40]。脉冲波前倾斜角度 γ 取决于闪耀光栅的负一级衍射光倾角 γ_1 和成像系统的放大率 M ,并满足关系式 $\tan \gamma = \tan(\gamma_1)/M$ 。此外,采用倾斜脉冲波前的方法来激励铌酸锂晶片的另一大优势在于,可以通过调整泵浦脉冲波前的倾斜角度来选择性地将相位匹配到期望的太赫兹频率上,同时还可以通过改变相位匹配的相互作用长度来调整产生的太赫兹声子极化激元的带宽^[36-37]。

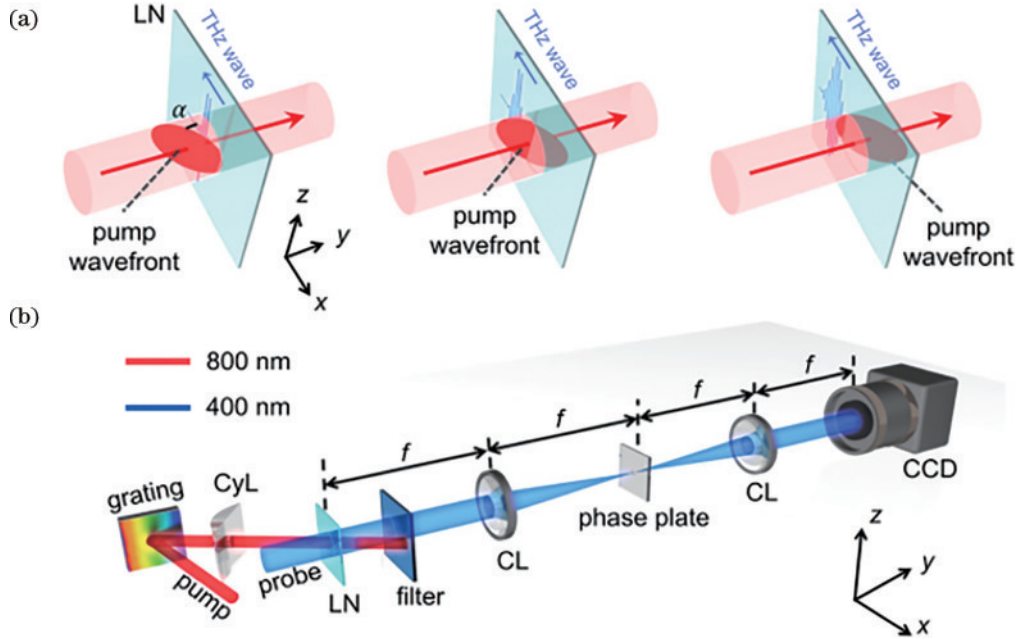


图 7 铌酸锂晶体中倾斜脉冲波前产生受激声子极化激元示意图^[14]。(a)倾斜脉冲波前的速度匹配示意图;(b)倾斜脉冲波前实验装置示意图

Fig. 7 Schematic diagram of stimulated phonon polaritons generated by tilted pulse wavefront in lithium niobate crystal^[14].

(a) Schematic diagram of velocity matching for tilted pulse wavefront; (b) schematic diagram of inclined pulse wavefront experimental device

4.1.3 片上声子极化激元的侧向窄带激发

除了广泛使用的倾斜波前窄带激发方案,南开大学团队还开发出了侧向激发的窄带激发方案,在解决了速度匹配问题的基础上,还实现了泵浦激光与受激

声子极化激元的共线传输。如图 8^[39]所示,泵浦激光线聚焦在铌酸锂晶体的侧表面上,泵浦激光和生成的声子极化激元波的偏振方向均沿着晶体的光轴方向。铌酸锂晶体的样品厚度远大于飞秒激光波长,但和太

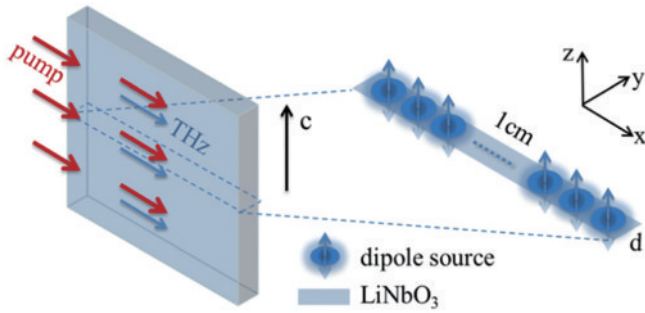


图 8 铌酸锂晶体中侧向激发产生受激声子极化激元示意图^[39]
Fig. 8 Schematic diagram of stimulated phonon polaritons generated by lateral excitation in lithium niobate crystals^[39]

赫兹声子极化激元波长量级接近。因此,铌酸锂晶体波导内的泵浦飞秒激光脉冲的传输接近体材料的传输情况,但太赫兹波却按照铌酸锂波导模式传输,并随波导厚度的变化而变化。当飞秒激光的群速度与某一频率的太赫兹声子极化激元波的相速度相匹配时,两者之间将实现共线传播,因此可以通过调节铌酸锂晶体的样品厚度来有效地调制产生的受激声子极化激元的频率和带宽。此外,通过构建特殊的 Au-Air-LN-Air-Au 和 SiO₂-LN-SiO₂ 多层侧向激发结构,可以进一步实现对太赫兹声子极化激元的控制^[39,41]。值得一提的是,利用侧向激发的方法可以在铌酸锂晶体内产生一个具有锁定初始相位的同步移动太赫兹源,从而完全消除太赫兹波传播过程中的一阶色散,使得太赫兹波在传播过程中相位始终保持不变,即实现“冻结相位”传播^[42]。

以上各类片上激发方法产生受激声子极化激元后,绝大部分能量均在晶体内传播。除此之外,还有一些激发方法在产生声子极化激元后,能量大部分向外辐射,形成在空间中传输的太赫兹波。例如使用飞秒激光激发楔形铌酸锂晶体向外辐射太赫兹波,使用飞秒激光激发金属光电天线向外辐射太赫兹波等,这些实验方法主要应用于太赫兹波调控、太赫兹物质探

测、太赫兹传感等各类太赫兹研究中,作为产生各种频率太赫兹波的有效手段^[9-10,43-44]。事实上,声子极化激元的各类研究手段也经常应用于太赫兹技术的研究中,例如片上声子极化激元的各类产生手段和探测手段。

4.2 片上声子极化激元的探测手段

目前片上受激声子极化激元的探测主要基于太赫兹时域光谱方法。传统的太赫兹时域光谱需要将产生的受激声子极化激元以太赫兹波的形式辐射到自由空间,然后再耦合到另一晶体中,利用电光效应等进行间接探测。另一种更便捷的方案则是直接在晶体上对产生的受激声子极化激元进行探测,形成单片的时域光谱。在具体探测时,既可以选择使用成像方法探测整个区域内受激声子极化激元的产生和演化过程,也可以使用电光采样的方法更精准地提取特定位置的时域信号。

4.2.1 受激声子极化激元的太赫兹时域探测

飞秒泵浦光经过延迟线后照射铌酸锂晶体等铁电晶体激发受激声子极化激元后,大部分能量向外辐射形成空间太赫兹波。太赫兹波与探测光共同照射另一铌酸锂晶体,此时由于电光效应,晶体的折射率会得到调制,而探测光穿过晶体后将携带该信息,再使用各类探测手段对这一信息进行探测,即可实现对受激声子极化激元的间接探测。

4.2.2 单片集成时域光谱探测片上声子极化激元

我们团队在传统时域光谱的基础上进行了改进,将声子极化激元的产生与探测集成在了一片铌酸锂晶体上,并使用了相衬成像技术来探测太赫兹波的空间分布。如图 9 所示,该系统中,泵浦光产生受激声子极化激元后由于铌酸锂晶体的电光效应,将导致铌酸锂晶体折射率的变化,从而致使垂直穿透铌酸锂晶体的探测光产生一个相位移动,这样就把声子极化激元波的强度信息转化为了探测光的相位信息。在中心焦平面处放置一块 $\lambda/4$ 相位板,来实现相位信息到振幅信

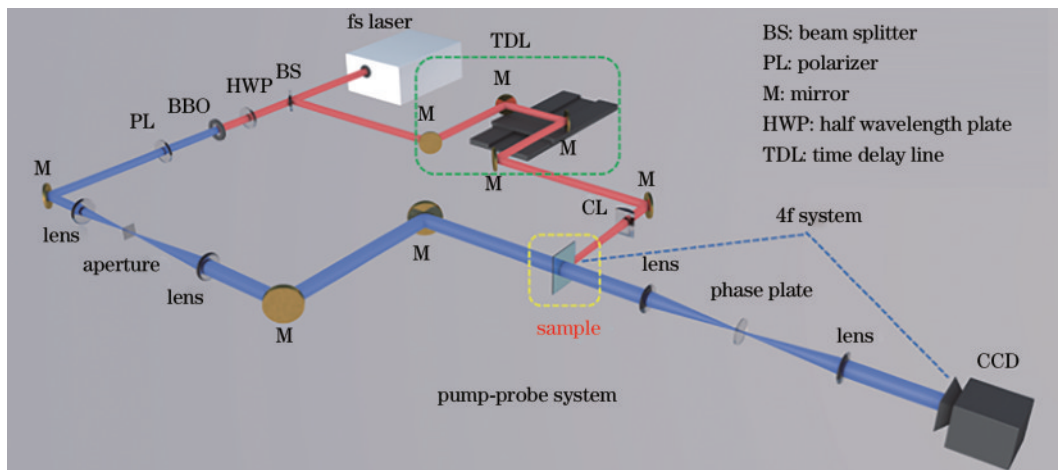


图 9 用于产生和探测声子极化激元的实验装置(泵浦-探测系统)示意图

Fig. 9 Schematic diagram of the experimental device (pump-detection system) for generating and detecting phonon polaritons

息的转换,这样就可以得到晶体中太赫兹电场的强度分布^[45]。目前该方法具有微米级的空间分辨精度和亚皮秒级的时间分辨精度,可以对太赫兹声子极化激元实现时空超分辨探测。

4.2.3 电光采样探测片上声子极化激元

电光采样是一种常见的用于探测声子极化激元的系统。如图 10 所示,泵浦激光偏振沿晶体光轴方向保证最大产生效率,探测光偏振与晶体光轴成 45° 夹角,后经 $\lambda/4$ 波片补偿晶体自身各向异性后被渥拉斯顿棱镜分为 o 光和 e 光,分别由平衡光电探测器收

集。在探测过程中,泵浦光在晶体中激发声子极化激元,在铌酸锂中传输过程中改变了晶体的折射率,折射率改变的部分会对经过的探测光的相位有明显的影响;而探测光的功率较低,无法在铌酸锂上激发出声子极化激元,只能穿过铌酸锂晶体携带相位信息。使用平衡光电探测器探测到探测光分束后两束偏振光的强度,可以得到声子极化激元强度的时域谱。平衡光电探测器的灵敏度高于 CCD 等探测设备,因此电光采样相对于时域光谱具有更高的探测精度和灵敏度。

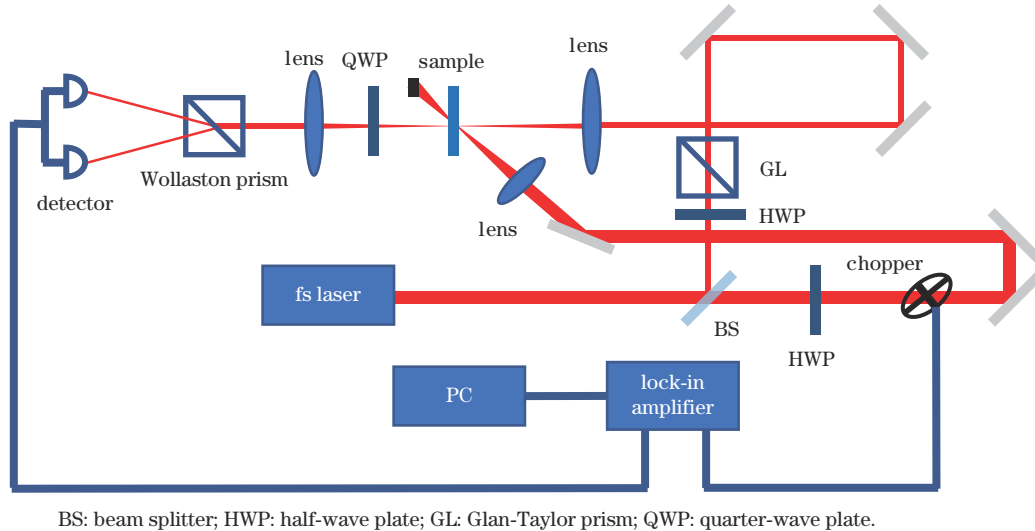


图 10 电光采样光路示意图

Fig. 10 Schematic diagram of the electro-optic sampling optical path

4.3 片上受激声子极化激元的调控

对片上声子极化激元的调控方法研究,是声子极化激元研究领域的重点之一。目前,能够对声子极化激元各项物理性质进行调控的实用型器件仍具有较多的需求未能满足,但在实验室阶段,对声子极化激元的各种基本物理量的调控,以及对声子极化激元传输行为、与物质相互作用过程的调控,已取得了很多成果。从调控对象的状态来区分,可简单把片上调控分为传输态调控和局域态调控。

4.3.1 传输态片上声子极化激元的调控方法

对于声子极化激元传输态的调控主要包括对于传输方向、传输速度、传输效率、传输对称性等要素的调控。

利用拓扑光子晶体的特性,通过引入拓扑光子晶体波导,可以实现对受激声子极化激元左右旋圆偏振态的传输方向进行控制^[46],也可以实现太赫兹声子极化激元在弯曲波导中的低损耗传播^[47]。如图 11 所示,我们团队采用量子谷霍尔效应实现了声子极化激元的拓扑谷传输,展示了受激声子极化激元在 V 形和 Z 形拓扑光子晶体波导中的传输情况。值得注意的是,声子极化激元波在波导中不仅成功地实现了大角度的拐弯,而且没有产生明显的传输损耗,这对于实现太赫兹

声子极化激元在弯曲波导中的低损耗传播具有重要意义。这些研究为将来实现太赫兹片上调控和低损耗传播提供了一些思路。

除此之外,在铌酸锂晶体表面沉积的金属超材料和超表面结构,凭借其能够激发局域表面等离子激元并与晶体表面的太赫兹倏逝场发生强烈相互作用的独特优势,成为调控片上太赫兹声子极化激元的重要手段之一。通过对超材料和超表面形状和结构参数的设置,可以实现对片上太赫兹波的一系列调控。如图 12 所示,我们团队发现,将多对金属条以阵列形式在晶体表面周期性排布,可以极大地增强晶体表面的太赫兹场,同时可以实现晶体内部太赫兹导波到太赫兹表面波的转换,如图 12(b)、(c)^[48]所示。此外,超表面结构还可以实现带阻滤波的作用,对传输的太赫兹波频率进行选择,如图 12(d)^[49]所示。

超表面将波导中的太赫兹波耦合到表面以后,就可以极大地方便太赫兹波与物质的相互作用,由此可以实现片上太赫兹集成的一系列应用,如微量物质的探测^[50]。图 13 显示了超表面在铌酸锂晶体太赫兹乳糖灵敏探测的效果。金属微棒阵列超表面结构的存在使得乳糖层的吸收大大增强。图 13(e)、(f)显示了不同间距和不同长度的金属微棒阵列超表面结构的

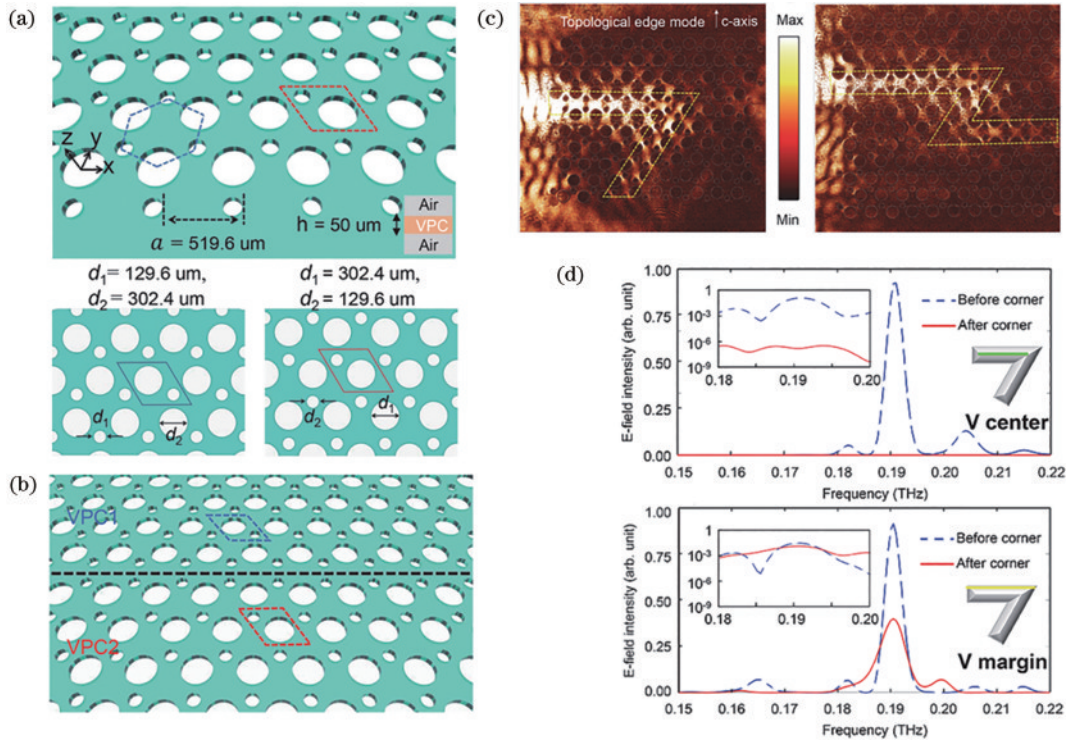


图 11 太赫兹声子极化激元的拓扑谷传输^[47]。(a)两种谷光子晶体结构示意图;(b)拓扑谷光子晶体波导结构示意图;(c)声子极化激元在 V 形和 Z 形拓扑谷光子晶体波导中的传输;(d)V 形拓扑谷光子晶体波导中第一个转角前后中心和边缘的传输光谱
 Fig. 11 Topological valley transmission of terahertz phonon polaritons^[47]. (a) Schematic diagrams of two types of valley photonic crystal structures; (b) schematic diagram of topological valley photonic crystal waveguide structure; (c) propagation of phonon polaritons in V-type and Z-type topological valley photonic crystal waveguides; (d) transmission spectra of the center and edge before and after the first corner in a V-type topological valley photonic crystal waveguide

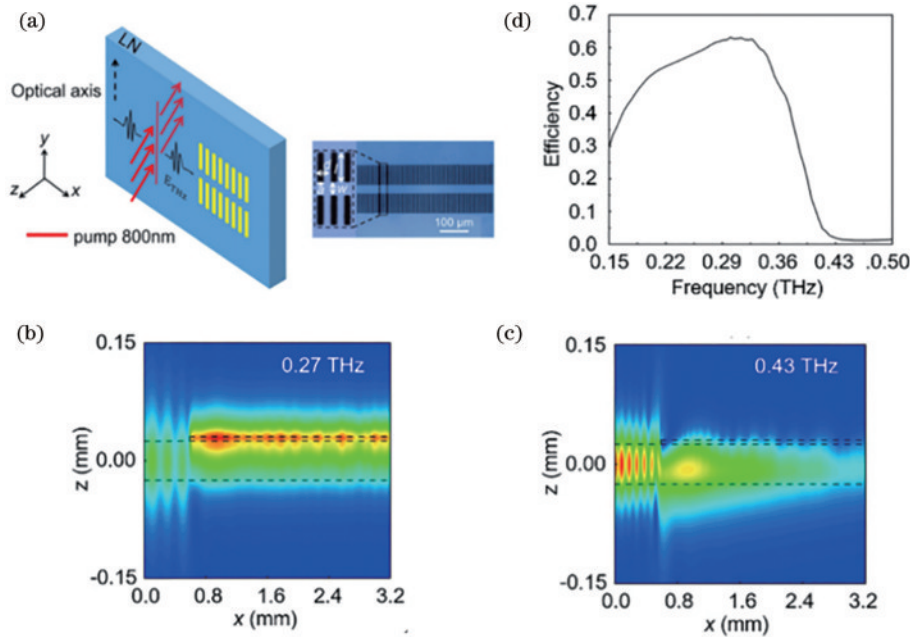


图 12 基于超表面结构的太赫兹导波到表面波的转换。(a)金属超表面结构示意图^[48];(b)(c)频率为 0.27 THz 和 0.43 THz 的太赫兹波在具有超表面结构的铌酸锂晶体上传播时的电场强度空间分布图^[48];(d)太赫兹波从铌酸锂亚波长波导到表面波的耦合效率^[49]
 Fig. 12 Conversion of terahertz guided waves to surface waves based on metasurface structure. (a) Schematic diagram of metal metasurface structure^[48]; (b) (c) spatial distribution of electric field intensity when terahertz waves with frequencies of 0.27 THz and 0.43 THz propagate on lithium niobate crystals with metasurface structures^[48]; (d) coupling efficiency of terahertz waves from lithium niobate subwavelength waveguides to surface waves^[49]

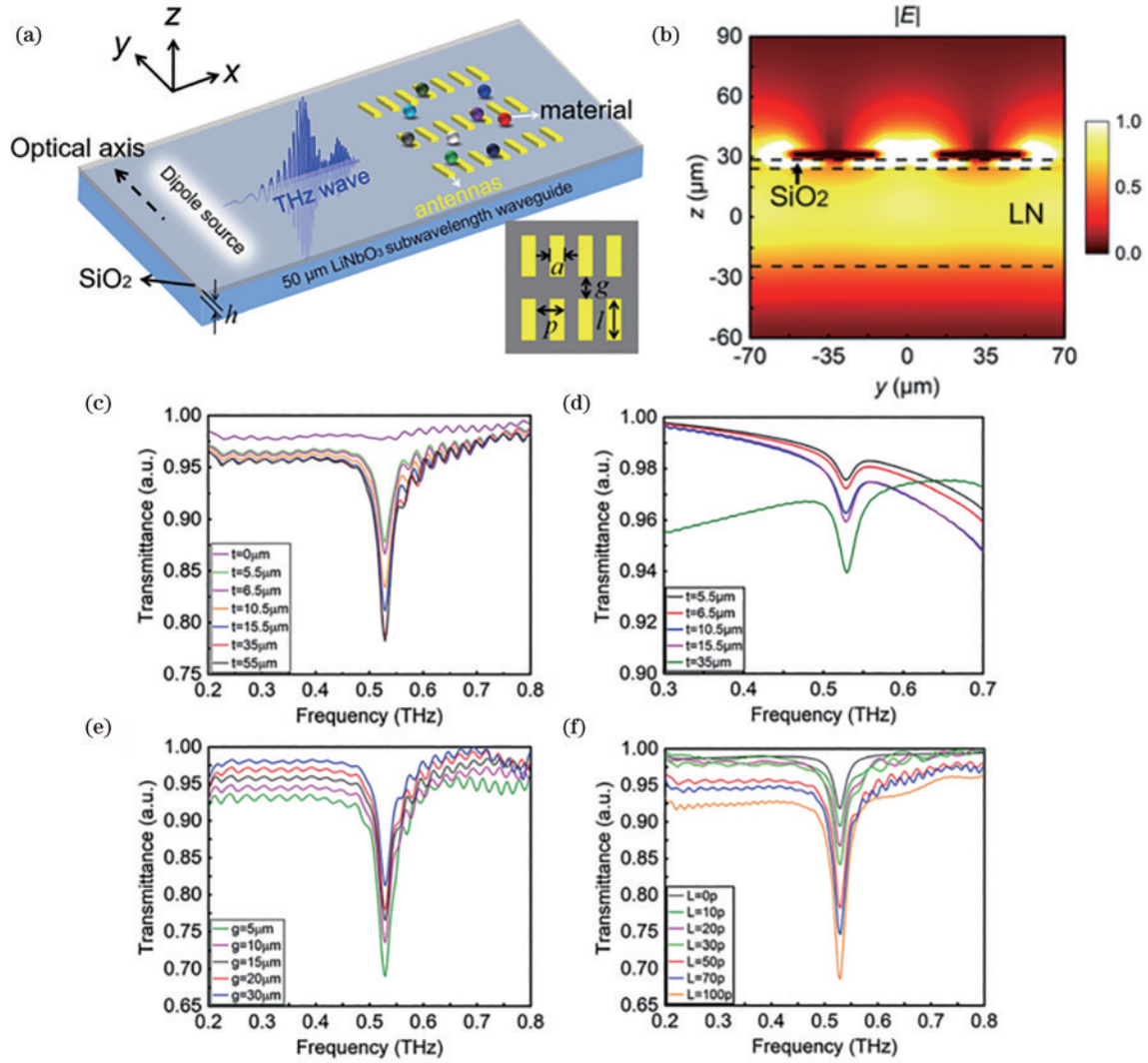


图 13 金属微棒阵列超表面诱导的增强片上太赫兹传感^[50]。(a)金属微棒阵列超表面结构示意图；(b)金属微棒阵列超表面的增强场限制；(c)(d)有无金属微棒阵列超表面结构时不同厚度乳糖层的透射光谱；(e)(f)不同间距和不同长度的金属微棒阵列超表面结构的透射光谱

Fig. 13 Enhanced terahertz sensing on a metal microrod array induced by metasurface enhancement^[50]. (a) Schematic diagram of metasurface structure of metal microrod array; (b) enhanced field confinement of metal micro rod array metasurfaces; (c) (d) transmission spectra of different thicknesses of lactose layers with or without metal microrod array metasurface structure; (e) (f) transmission spectra of metasurface structures of metal microrod arrays with different spacing and length

透射光谱,通过减小空气间隙尺寸,可以进一步增强耦合的局域电场,从而提高乳糖层的吸收率,而增加金属微棒阵列超表面的长度则为局域电场提供了更大的限制。这一研究有助于未来芯片级太赫兹探测器件的实现。

通过相位梯度超表面动量对称性破坏的方法实现太赫兹波的非对称传输,是实现太赫兹片上光二极管^[51]的重要进步。如图 14(a)所示,晶体表面单向相位梯度的存在,致使表面动量的对称性被破坏,从而导致正反向高度不对称的太赫兹波传输,如图 14(b)、(c)所示。在太赫兹波传输的正方向上,入射的 TE_{00} 模式逐渐转换为 TE_{10} 模式,并且传输率高达 73.2%,然而在反方向上,绝大部分的太赫兹波则被阻挡。

4.3.2 局域态片上声子极化激元的调控方法

对声子极化激元局域态的调控主要聚焦于局部声子极化激元场的增强,强化声子极化激元与物质的相互作用,从而为研究声子极化激元的各类物理现象提供良好的研究平台。

金属超表面结构在局域态调控方面的应用可以实现晶体表面太赫兹场增强和局域化^[52]。如图 15(a)、(b)所示,两种不同的金属天线可以实现不同程度的太赫兹局部场增强。通过调谐天线长度,还可以对局域增强的频率进行调谐。图 15(c)中的黑色虚线显示了铌酸锂晶体板的厚度,通过具体分析可以发现,当晶体表面没有天线结构时,太赫兹电场强度主要分布在晶体内部。而对于表面存在天线结构的铌酸锂晶体来说,太赫兹电场强度主要集中在晶体表面,并且通过减

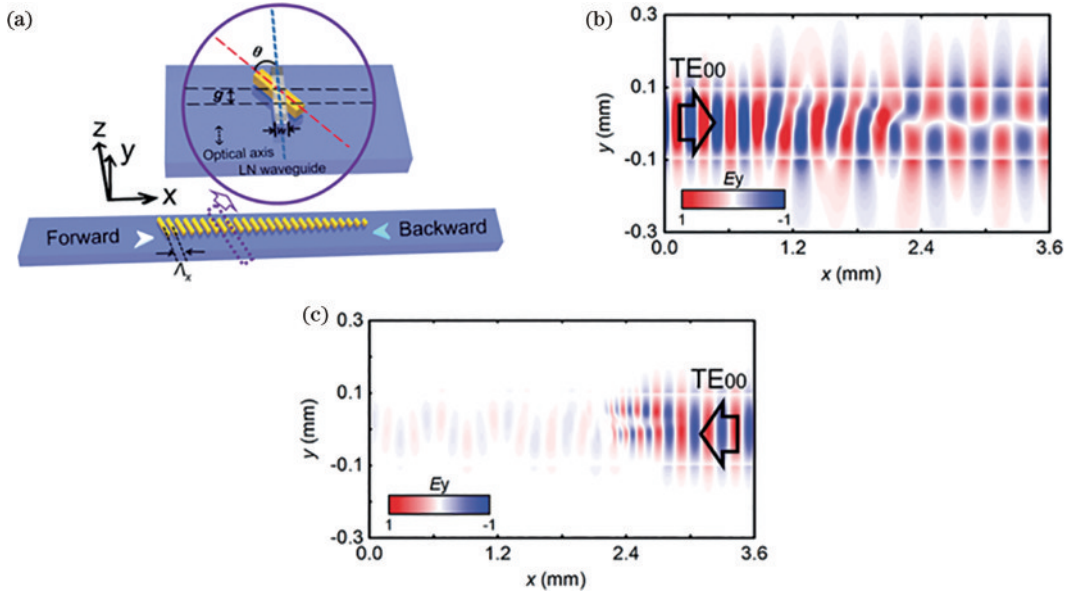


图 14 基于相位梯度超表面的太赫兹波单向传输^[51]。(a)相位梯度超表面结构示意图；(b)太赫兹波在相位梯度超表面上的正向传输；(c)太赫兹波在相位梯度超表面上的反向传输
 Fig. 14 Unidirectional transmission of terahertz waves based on phase gradient metasurfaces^[51]. (a) Schematic diagram of phase gradient metasurface structure; (b) forward propagation of terahertz waves on phase gradient metasurfaces; (c) reverse propagation of terahertz waves on phase gradient metasurfaces

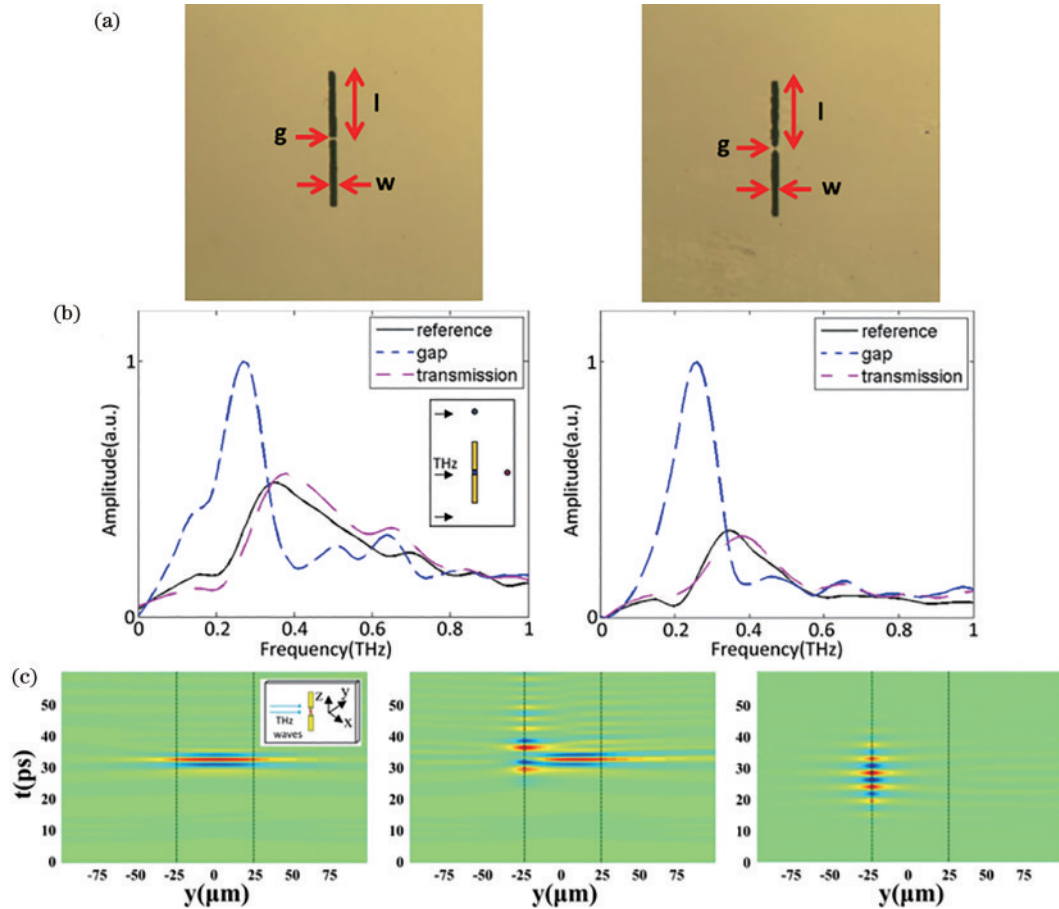


图 15 基于复合天线结构的太赫兹波表面增强^[52]。(a)两种复合天线结构示意图；(b)平端天线结构和尖端天线结构的光谱图；(c)不同实验条件下太赫兹电场强度的空间分布图
 Fig. 15 Surface enhancement of terahertz waves based on a composite antenna structure^[52]. (a) Schematic diagram of two types of composite antenna structures; (b) spectral maps of flat end antenna structure and tip antenna structure; (c) spatial distribution of terahertz electric field intensity under different experimental conditions

小太赫兹源的光谱宽度可以进一步增强晶体表面太赫兹电场的强度。

而在铌酸锂片上微结构领域,我们团队研究发现,铌酸锂微腔与两个布拉格光栅镜相结合,可以将

太赫兹波成功地限制在腔中并形成驻波模式,这一现象可以从腔内太赫兹场的全时空演化信息中观察到,如图 16^[53]所示。可以看出,太赫兹波被限制在谐振器中并从边界处多次反射形成了三个共振模式。

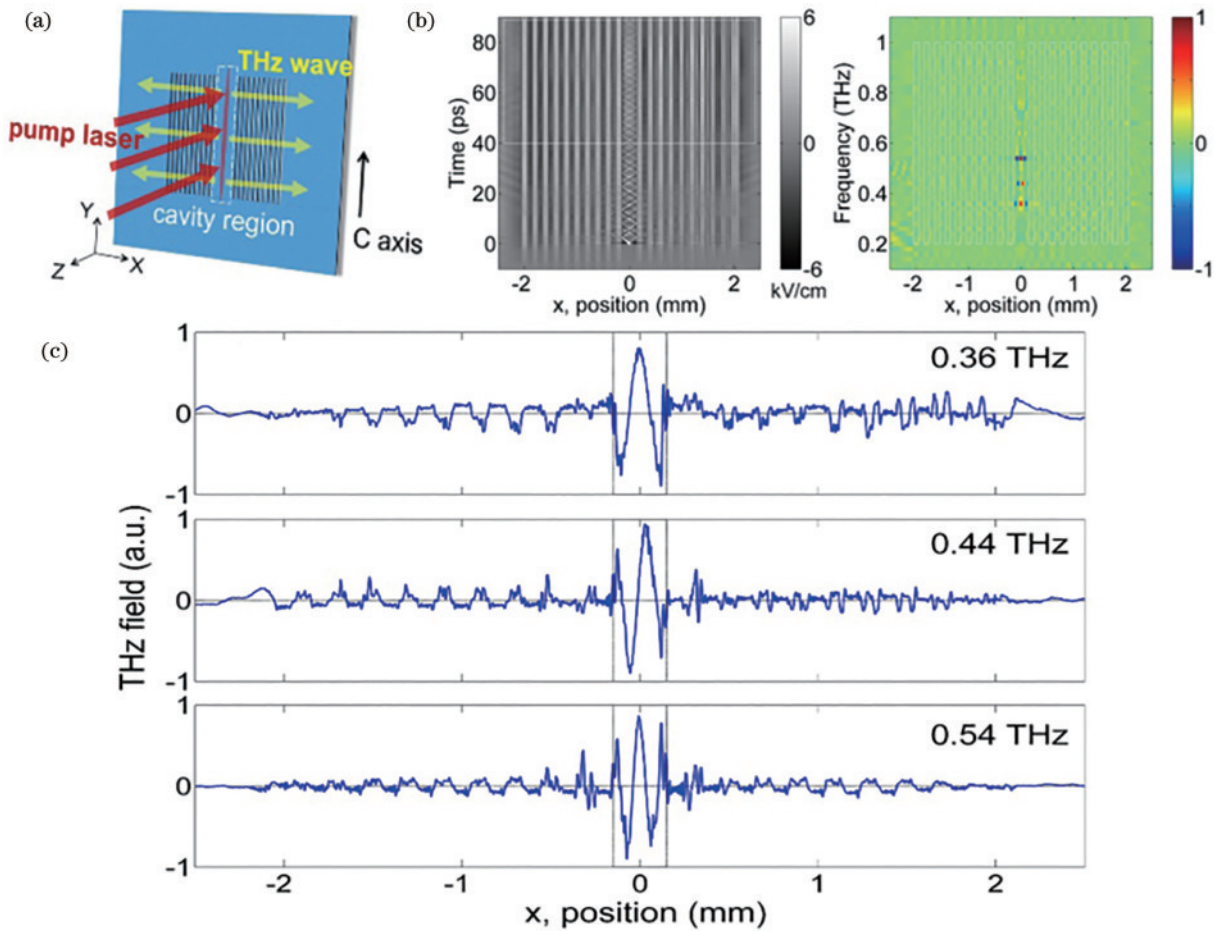


图 16 太赫兹法布里-珀罗谐振器中的光限制和驻波形成^[53]。(a)法布里-珀罗谐振器实验装置示意图;(b)谐振腔内太赫兹场的时空分布图和光谱图;(c)谐振腔内太赫兹场驻波模式的空间分布图

Fig. 16 Light confinement and standing wave formation in a terahertz Fabry Perot resonator^[53]. (a) Schematic diagram of the Fabry Perot resonator experimental setup; (b) spatiotemporal distribution and spectral map of the terahertz field in the resonant cavity; (c) spatial distribution of standing wave modes in a terahertz field within a resonant cavity

借助前文所述的太赫兹场全时空演化信息观测技术,还可以进一步将研究扩展到多个太赫兹微结构之间的相互耦合现象,比如切割线和双开口环形谐振器之间的耦合^[54]以及两个微腔之间的耦合^[55],如图 17(a)所示。根据图 17(b)所示的传输光谱,不难发现单个双开口环形谐振器的传输光谱在 0.42 THz 处存在一个传输谷,而单个金属线的传输光谱在 0.43 THz 处存在一个传输谷。对于二者的耦合结构,传输光谱在宽吸收带内展示出明显的透明窗口,传输谷移动到 0.39 THz 和 0.45 THz 两个位置。在另一项研究中,腔腔耦合相互作用导致透射率曲线中出现模式分裂以及一个透明窗口,如图 17(c)~(e)所示。这些发现将有助于太赫兹片上信息处理和传感技术的进一步发展。

本文主要介绍了对于太赫兹声子极化激元横波下支的激发以及相关的研究。目前对于太赫兹声子极化激元的激发与相关研究主要集中于横波的下支,但剩余射线带与横波上支的相关研究也取得了一些成果。对于在铌酸锂晶体中激发横波的下支来说,其通常的激发频率在 3 THz 附近或以内。如果使用近化学计量比的铌酸锂晶体,则可以激发出频率在 5 THz 附近的太赫兹声子极化激元。对于上下支之间的剩余射线带来说,通过使用自由电子激光器等外置太赫兹源,可以激发出这一频率的受激声子极化激元^[56]。对于横光学声子的上支的激发,目前研究较少,可行性未有定论。因此,探寻激发和探测声子极化激元横波上支等其他模式的方法,进一步探索其元激发性质,是受激声子极化激元未来的重要研究方向之一。

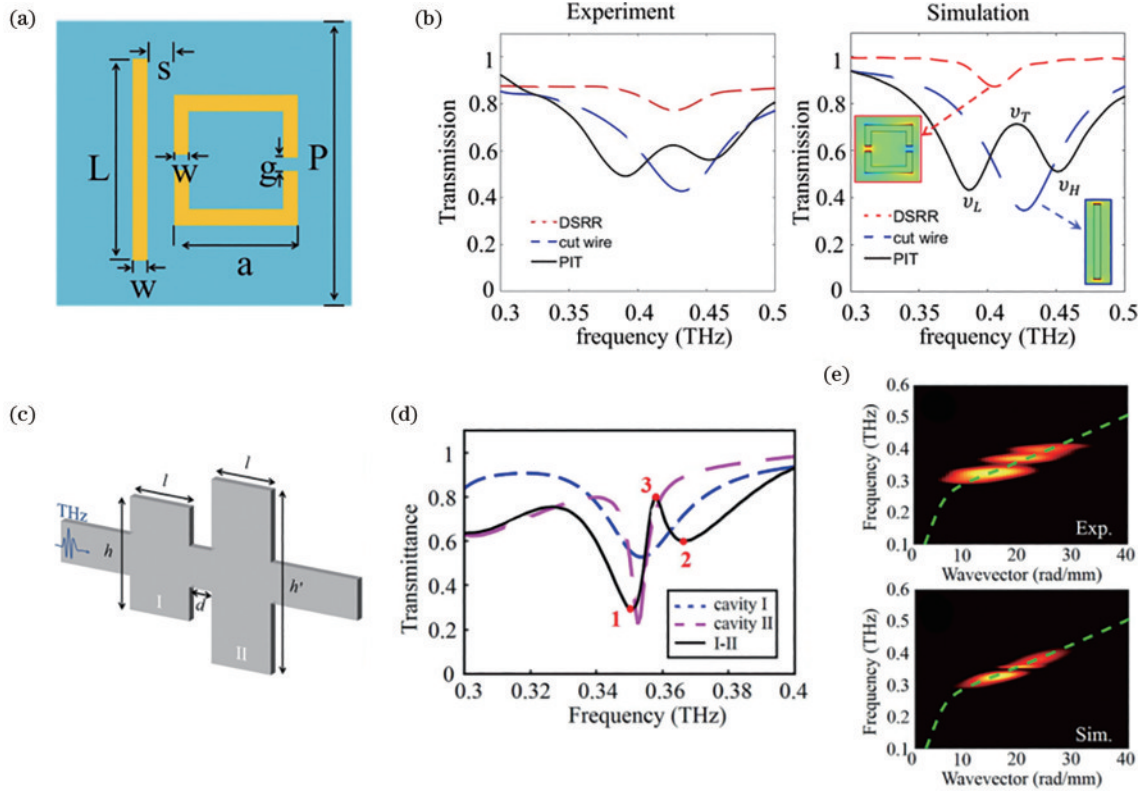


图 17 多个谐振结构之间的耦合相互作用。(a)由金属切割线和金属双开口环形谐振器组成的耦合结构示意图^[54];(b)单个双开口环形谐振器、单个金属切割线以及整体耦合结构的实验和模拟传输光谱^[54];(c)腔腔耦合结构示意图^[55];(d)单腔和腔腔结构的透射率曲线^[55];(e)腔腔结构传输过程的实验和模拟色散曲线^[55]

Fig. 17 Coupling interaction between multiple resonant structures. (a) Schematic diagram of the coupling structure composed of a metal cutting line and a metal double open ring resonator^[54]; (b) experimental and simulated transmission spectra for a single double open ring resonator, a single metal cutting line, and an overall coupled structure^[54]; (c) schematic diagram of cavity coupling structure^[55]; (d) transmission curves of single cavity and cavity structures^[55]; (e) experimental and simulated dispersion curves of cavity structure transmission process^[55]

5 结束语

本综述主要介绍了声子极化激元从自发产生到受激产生的发展,分别阐述了其在理论研究,光与物质非线性相互作用,产生、调控以及探测等方面的发展现状。尽管声子极化激元的相关研究已然收获了令人振奋的结果,受激声子极化激元相关领域依然存在许多亟待解决的难题:

1) 声子极化激元的理论体系。长期以来,声子极化激元的理论都止步在黄昆先生 70 年前的方程组。随后,声子极化激元理论的发展缓慢,并且与相关实验技术发展的联系并不紧密。在未来,我们更希望对声子极化激元这种耦合波的量子特性有一个更为清晰的理论描述,使得对室温下声子极化激元的单量子操控、极化激元量子比特控制成为可能。

2) 声子极化激元的实验体系。目前声子极化激元的实验体系大都是基于对太赫兹波,或者说声子极化激元的电磁波分量进行的探测和应用,因此这些技术的发展和进步其实是与太赫兹技术的发展分不开的。在未来,我们更希望通过各种激发手段与测量手

段,最大程度上强化声子的贡献,进而为实现声子极化激元光机械平台添砖加瓦。

3) 声子极化激元平台上的太赫兹技术。声子极化激元作为一种重要的连接电子学和光子学的手段,又恰好处于太赫兹频段,是构建太赫兹平台和发展太赫兹技术的天然工具。我们在已有的铌酸锂亚波长平板波导的理论基础上,已经深入研究了铌酸锂矩形亚波长波导的稳态和瞬态性质。结合国内外对于铌酸锂太赫兹滤波器、微腔、马赫-曾德尔(M-Z)干涉仪等器件的研究,后续构建铌酸锂上的太赫兹光芯片是重要的研究方向。

4) 受激声子极化激元与光与物质相互作用研究。声子极化激元作为一种非常重要的元激发,它广泛地存在于各种极性离子晶体内。不论是自发声子极化激元,还是受激激发的声子极化激元,都对材料的性质具有非常重要的影响。再加之声子极化激元又可以在常温下稳定存在,因此其影响也要远远大于其他元激发。

在未来的受激声子极化激元太赫兹物理发展蓝图中,科学家们将不再止步于采用飞秒激光、阿秒激光等高频超快超强激光影响电子的方式,极其有限地调控

与改变材料的性质,而是采用太赫兹波去直接与离子发生相互作用,通过受激的声子极化激元来改变材料的各方面的性质。经过太赫兹声子极化激元调控过的离子晶体材料也将广泛地应用在光学、凝聚态物理、量子信息、电磁学、材料学和太赫兹技术等各个领域。

参 考 文 献

- [1] M. 玻恩, 黄昆. 晶格动力学理论[M]. 葛惟锴, 贾惟义, 译. 北京: 北京大学出版社, 2011: 81-102.
Born M, Huang K. Dynamical theory of crystal lattices [M]. Ge W K, Jia W Y, Transl. Beijing: Peking University Press, 2011: 81-102.
- [2] 张光寅, 蓝国祥, 王玉芳. 晶格振动光谱学[M]. 2版. 北京: 高等教育出版社, 2001.
Zhang G Y, Lan G X, Wang Y F. Lattice vibration spectroscopy[M]. 2nd ed. Beijing: Higher Education Press, 2001.
- [3] Hopfield J J. Theory of the contribution of excitons to the complex dielectric constant of crystals[J]. Physical Review, 1958, 112(5): 1555-1567.
- [4] Henry C H, Hopfield J J. Raman scattering by polaritons [J]. Physical Review Letters, 1965, 15(25): 964-966.
- [5] 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.
- [6] Koehl R M, Adachi S, Nelson K A. Direct visualization of collective wavepacket dynamics[J]. The Journal of Physical Chemistry A, 1999, 103(49): 10260-10267.
- [7] Dougherty T P, Wiederrecht G P, Nelson K A, et al. Femtosecond resolution of soft mode dynamics in structural phase transitions[J]. Science, 1992, 258(5083): 770-774.
- [8] Feurer T, Stoyanov N S, Ward D W, et al. Terahertz polaritonics[J]. Annual Review of Materials Research, 2007, 37: 317-350.
- [9] 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.
- [10] Wu X J, Kong D Y, Hao S B, et al. Generation of 13.9-mJ terahertz radiation from lithium niobate materials [J]. Advanced Materials, 2023, 35(23): 2208947.
- [11] Feurer T, Vaughan J C, Nelson K A. Spatiotemporal coherent control of lattice vibrational waves[J]. Science, 2003, 299(5605): 374-377.
- [12] Suizu K, Koketsu K, Shibuya T, et al. Extremely frequency-widened terahertz wave generation using Cherenkov-type radiation[J]. Optics Express, 2009, 17(8): 6676-6681.
- [13] Bodrov S B, Ilyakov I E, Shishkin B V, et al. Efficient terahertz generation by optical rectification in Si-LiNbO₃-air-metal sandwich structure with variable air gap[J]. Applied Physics Letters, 2012, 100(20): 201114.
- [14] Lu Y, Zhang Q, Wu Q, et al. Giant enhancement of THz-frequency optical nonlinearity by phonon polariton in ionic crystals[J]. Nature Communications, 2021, 12: 3183.
- [15] 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.
- [16] Pein B C, Chang W D, Hwang H Y, et al. Terahertz-driven luminescence and colossal stark effect in CdSe-CdS colloidal quantum dots[J]. Nano Letters, 2017, 17(9): 5375-5380.
- [17] Li G, Medapalli R, Mentink J H, et al. Ultrafast kinetics of the antiferromagnetic-ferromagnetic phase transition in FeRh[J]. Nature Communications, 2022, 13: 2998.
- [18] Li X, Qiu T, Zhang J H, et al. Terahertz field-induced ferroelectricity in quantum paraelectric SrTiO₃[J]. Science, 2019, 364(6445): 1079-1082.
- [19] Lu Y, Wu Q, Xiong H, et al. Light-matter interaction beyond Born-Oppenheimer approximation mediated by stimulated phonon polaritons[J]. Communications Physics, 2022, 5: 299.
- [20] Boyd R W. Nonlinear optics[M]. 3rd ed. Salt Lake City: Academic Press, 2009.
- [21] Yumoto G, Matsunaga R, Hibino H, et al. Ultrafast terahertz nonlinear optics of landau level transitions in a monolayer graphene[J]. Physical Review Letters, 2018, 120(10): 107401.
- [22] Zhang Y, Huang D, Shan Y W, et al. Doping-induced second-harmonic generation in centrosymmetric graphene from quadrupole response[J]. Physical Review Letters, 2019, 122(4): 047401.
- [23] Yin X B, Ye Z L, Chenet D A, et al. Edge nonlinear optics on a MoS₂ atomic monolayer[J]. Science, 2014, 344(6183): 488-490.
- [24] Seyler K L, Schaibley J R, Gong P, et al. Electrical control of second-harmonic generation in a WSe₂ monolayer transistor[J]. Nature Nanotechnology, 2015, 10(5): 407-411.
- [25] Lin K Q, Bange S, Lupton J M. Quantum interference in second-harmonic generation from monolayer WSe₂[J]. Nature Physics, 2019, 15(3): 242-246.
- [26] Franken P A, Hill A E, Peters C W, et al. Generation of optical harmonics[J]. Physical Review Letters, 1961, 7(4): 118-119.
- [27] Dougherty T P, Wiederrecht G P, Nelson K A, et al. Femtosecond resolution of soft mode dynamics in structural phase transitions[J]. Science, 1992, 258(5083): 770-774.
- [28] Sun K L, Jiang H, Bykov D A, et al. 1D quasi-bound states in the continuum with large operation bandwidth in the $\omega\sim k$ space for nonlinear optical applications[J]. Photonics Research, 2022, 10(7): 1575-1581.
- [29] Yang K Y, Oh D Y, Lee S H, et al. Bridging ultrahigh-Q devices and photonic circuits[J]. Nature Photonics, 2018, 12(5): 297-302.
- [30] Vabishchevich P, Kivshar Y. Nonlinear photonics with metasurfaces[J]. Photonics Research, 2023, 11(2): B50-B64.
- [31] Zhang X Y, Cao Q T, Wang Z, et al. Symmetry-breaking-induced nonlinear optics at a microcavity surface [J]. Nature Photonics, 2019, 13(1): 21-24.
- [32] Wang C L, Shi R, Gao L, et al. Quenching of second-

- harmonic generation by epsilon-near-zero media[J]. *Photonics Research*, 2023, 11(8): 1437-1448.
- [33] Lourés C R, Faccio D, Biancalana F. Nonlinear cavity and frequency comb radiations induced by negative frequency field effects[J]. *Physical Review Letters*, 2015, 115(19): 193904.
- [34] Lu Y, Xiong H, Huang Y B, et al. Nonlinear harmonic generation of terahertz waves in a topological valley polaritonic microcavity[J]. *Chinese Optics Letters*, 2023, 21(8): 081901.
- [35] 黄昆, 韩汝琦. 固体物理学[M]. 4 版. 北京: 高等教育出版社, 2014: 49-55.
Huang K, Han R Q. Solid state physics[M]. 4th ed. Beijing: Higher Education Press, 2014: 49-55.
- [36] 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.
- [37] Lin K H, Werley C A, Nelson K A. Generation of multicycle terahertz phonon-polariton waves in a planar waveguide by tilted optical pulse fronts[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 95(10): 103304.
- [38] Wu Q, Chen Q Q, Zhang B, et al. Terahertz phonon polariton imaging[J]. *Frontiers of Physics*, 2013, 8(2): 217-227.
- [39] Yang H M, Qi J W, Pan C P, et al. Efficient generation and frequency modulation of quasi-monochromatic terahertz wave in Lithium Niobate subwavelength waveguide[J]. *Optics Express*, 2017, 25(13): 14766-14773.
- [40] Hebling J. Derivation of the pulse front tilt caused by angular dispersion[J]. *Optical and Quantum Electronics*, 1996, 28(12): 1759-1763.
- [41] Carnio B N, Elezzabi A Y. Enhanced broadband terahertz radiation generation near the reststrahlen band in sub-wavelength leaky-mode LiNbO₃ waveguides[J]. *Optics Letters*, 2018, 43(8): 1694-1697.
- [42] Lu Y, Wu Q, Xiong H, et al. Observation of “frozen-phase” propagation of THz pulses in a dispersive optical system[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2021, 15(7): 2000591.
- [43] Guerboukha H, Nallappan K, Skorobogatiy M. Toward real-time terahertz imaging[J]. *Advances in Optics and Photonics*, 2018, 10(4): 843-938.
- [44] Wang D X, Xu K D, Luo S Y, et al. A high Q-factor dual-band terahertz metamaterial absorber and its sensing characteristics[J]. *Nanoscale*, 2023, 15(7): 3398-3407.
- [45] Werley C A, Wu Q, Lin K H, et al. Comparison of phase-sensitive imaging techniques for studying terahertz waves in structured LiNbO₃[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2010, 27(11): 2350-2359.
- [46] Xiong H, Wu Q, Lu Y, et al. Polarization-resolved edge states in terahertz topological photonic crystal[J]. *Optics Express*, 2019, 27(16): 22819-22826.
- [47] Xiong H, Lu Y, Wu Q, et al. Topological valley transport of terahertz phonon-polaritons in a LiNbO₃ chip [J]. *ACS Photonics*, 2021, 8(9): 2737-2745.
- [48] Wang R D, Wu Q, Zhang Q, et al. Conversion from terahertz-guided waves to surface waves with metasurface [J]. *Optics Express*, 2018, 26(24): 31233-31243.
- [49] Zhang B, Wu Q, Pan C P, et al. THz band-stop filter using metamaterials surfaced on LiNbO₃ sub-wavelength slab waveguide[J]. *Optics Express*, 2015, 23(12): 16042-16051.
- [50] Wang R D, Wu Q, Zhang Y Q, et al. Enhanced on-chip terahertz sensing with hybrid metasurface/lithium niobate structures[J]. *Applied Physics Letters*, 2019, 114(12): 121102.
- [51] Wang R D, Wu Q, Cai W, et al. Broadband on-chip terahertz asymmetric waveguiding via phase-gradient metasurface[J]. *ACS Photonics*, 2019, 6(7): 1774-1779.
- [52] Zhang Q, Qi J W, Wu Q, et al. Surface enhancement of THz wave by coupling a subwavelength LiNbO₃ slab waveguide with a composite antenna structure[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7: 17602.
- [53] Pan C P, Wu Q, Zhang Q, et al. Direct visualization of light confinement and standing wave in THz Fabry-Perot resonator with Bragg mirrors[J]. *Optics Express*, 2017, 25(9): 9768-9777.
- [54] Zhao W J, Qi J W, Lu Y, et al. On-chip plasmon-induced transparency in THz metamaterial on a LiNbO₃ subwavelength planar waveguide[J]. *Optics Express*, 2019, 27(5): 7373-7383.
- [55] Zhang Q, Qi J W, Lu Y, et al. Cavity-cavity coupling based on a terahertz rectangular subwavelength waveguide [J]. *Journal of Applied Physics*, 2019, 126(6): 063103.
- [56] de Oliveira T V A G, Nörenberg T, Álvarez-Pérez G, et al. Nanoscale-confined terahertz polaritons in a van der Waals crystal[J]. *Advanced Materials*, 2021, 33(2): 2005777.