

光学学报

强场宽带太赫兹波辐射的研究进展

赵航^{1,3}, 赵跃进^{1,3*}, 张亮亮², 张存林²

¹北京理工大学光电学院, 北京 100081;

²首都师范大学物理系, 北京 100048;

³北京理工大学长三角研究院, 浙江 嘉兴 314019

摘要 太赫兹光谱分析和检测技术在材料特性研究、医学诊断、环境监控等方面具有广阔的应用前景。目前高性能太赫兹源的缺乏是太赫兹光谱检测和成像技术发展缓慢的制约因素之一。因此,强场宽带太赫兹源的开发一直是太赫兹领域的研究重点。综述超快飞秒激光脉冲驱动下强场太赫兹波辐射的研究进展,详述激光激励金属纳米薄膜、气体和液体中等离子体辐射宽频强场太赫兹波的现象和物理机制,并比较了各种强场太赫兹产生方法的特点和优缺点,最后讨论基于超快激光激发物质产生太赫兹波的发展前景及所面临的挑战。

关键词 超快光学; 太赫兹辐射; 金属薄膜; 气体等离子体; 液体等离子体

中图分类号 O436 文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS230754

1 引言

太赫兹 (THz) 范围 (0.1~10 THz) 位于电磁频谱中的微波和红外 (IR) 区域之间, 具有光子能量低、穿透性强、频谱覆盖多种有机和生物大分子的分子间振动和转动能级等特性。太赫兹技术作为一个融合电子学和光子学的前沿技术, 在军事应用、生物医学工业和未来通信等各个领域都有着巨大的发展前景^[1]。高性能的太赫兹源是太赫兹光谱技术、太赫兹诊断和成像、太赫兹雷达和通信等投入实际应用的决定性因素^[2-3]。近几十年来, 迅速发展的超快激光脉冲为太赫兹脉冲的产生提供了有效、稳定的激发光源^[4-6]。然而, 受限于现有太赫兹源的低输出功率和太赫兹频率范围内的较高热背景噪声等因素, 对新型太赫兹源的能量、带宽等性能提出了很高的要求。

产生太赫兹辐射的方法主要有光学方法、太赫兹量子级联激光器和固体电子器件^[7-17]。太赫兹量子级联激光器通过量子阱带间的电子弛豫发射太赫兹辐射^[10]。一些固态电子器件也能在 1 THz 附近或以下产生太赫兹辐射, 例如共振隧穿二极管, 它们利用缝隙天线耦合 342 GHz 振荡的三次谐波, 在 1 THz 附近产生太赫兹波^[11]。本文主要研究产生太赫兹辐射的光学方法。以低重复频率、高能量的飞秒激光脉冲作为泵浦光源, 如钛宝石飞秒激光放大器, 可以在多种靶材中激

发强烈的非线性效应, 从而产生太赫兹辐射。这种太赫兹辐射为操纵和控制复杂的凝聚态系统提供了强大的工具。同时, 在飞秒激光脉冲驱动下受激辐射太赫兹波的靶材也得到了广泛的研究和拓展, 其物质形态也全面涵盖了固态、气态和液态。

1) 实验室中普遍使用光导天线和非线性电光晶体作为太赫兹源^[18-21]。利用超短激光脉冲激发不同固体介质来产生稳定的太赫兹波辐射, 该辐射可应用于太赫兹时域光谱成像等研究, 其信噪比要比传统的红外傅里叶光谱高得多, 但太赫兹发射和检测的频谱范围是有限的, 通常覆盖 0~3 THz 范围^[22]。高频段的缺失是介质和半导体中光声子谐振引起的太赫兹波的吸收导致的^[23]。而且利用超短激光脉冲的光电导、光整流等方法产生的太赫兹辐射虽然具有脉宽窄、峰值功率高等优点, 但缺点是时间相干性较差、转换效率比较低、频率不可连续调节、平均功率比较低, 这不利于成像与探测。因此, 需要发展高效且频带较宽的太赫兹源克服以上的缺陷与不足, 进而加快太赫兹技术走向实际应用的步伐。近期, 学者们将目光集中在产生太赫兹波的金属薄膜^[24-28], 并预想了可能的潜力。

2) 飞秒激光激发空气等离子体作为最具竞争力的宽带太赫兹源之一, 受到了国内外学者的广泛关注, 与使用非线性晶体或光导天线的太赫兹产生方法相比, 该方法具有宽带、高强度、远距离探测的可行性及无激

收稿日期: 2023-03-30; 修回日期: 2023-04-30; 录用日期: 2023-05-15; 网络首发日期: 2023-05-26

基金项目: 国家自然科学基金 (61935001, 12074272, 62205020)、国家重点研发计划 (2020YFB2009303)、中国博士后科学基金 (2022M710372)、北京市自然科学基金 (JQ18015)

通信作者: *yjzhao@bit.edu.cn

光损伤阈值的优点^[29-35]。最初,使用单色激光激发空气并产生太赫兹波,能量非常微弱,不适用于实际应用^[29-30]。使用基频波和二次谐波混合的双色激光场代替单色激光场可以将生成的太赫兹波的强度增加至少 2 个数量级,这使气体等离子体成为可选的高效太赫兹源^[31-35]。随着这种产生技术的不断发展,利用多色激光激发空气产生太赫兹波的方法也得到研究,为提高太赫兹转换效率提供了一些优化策略^[36]。此外,关于空气产生太赫兹辐射的内在机制现在还没有得到完全的定论,需要学者们进行进一步探索。

3) 目前,液体(包括水和其他材料)作为太赫兹辐射源的报道很少。激光脉冲照射液态水的动力学研究已有 20 多年的历史。然而,水很少被报道为太赫兹辐射源。2017 年, Jin 等^[37]报道了液态水膜产生太赫兹波的可能性。几乎同时, Dey 等^[38]报道了液体中超短激光丝能产生太赫兹波辐射的内容。在 2018 年发表在 *Nature Photonics* 上的评论文章中,这些研究的科学意义得到了高度评价,并称液体是作为太赫兹源物质状态的“最后谜题”^[39]。研究液态水辐射太赫兹波将解决太赫兹源的最后一个材料问题,从而形成新的太赫兹技术和应用。

综上,目前仍缺少高能量、宽频带,尤其是二者兼备的太赫兹源。如果可以实现宽带强太赫兹辐射的稳定输出,将有望促进太赫兹技术在多种领域的发展。本团队致力于开发出能量更高、转换效率更高、频谱更宽的太赫兹辐射源。本文综述了近期利用超快飞秒激光激发多种物质形态产生强场宽带太赫兹波的研究进展,主要包括关于激光诱导金属纳米薄膜辐射太赫兹波的研究、激光诱导气体等离子体辐射太赫兹波的研究、激光诱导液体辐射太赫兹波的最新研究进展,分析与讨论了每种方案相关的内在物理机制。本文为强场宽带太赫兹源的研究总结了许多重要的探索方向。

2 金属薄膜辐射太赫兹波

目前,实验室内利用飞秒激光激发固体产生太赫兹波主要是利用光导天线、非线性晶体方案的,而有关利用金属材料产生太赫兹辐射的文献较少,相关产生机制也处于探索阶段^[24-28]。

2007 年 Welsh 等^[24-25]报道了纳米结构的金属光栅可以产生 0.2~2.5 THz 太赫兹波的内容,他们认为太赫兹波产生的原因是表面等离子体波加速光电子导致的非相干光整流作用。2011 年 Polyushkin 等^[26]利用银纳米颗粒阵列产生 0~1.5 THz 的太赫兹脉冲,他们认为产生的光电子在非均匀等离子体电场的有质动力驱动下产生加速度,从而向外辐射太赫兹波。2014 年 Dai 等^[27]用双色激光场激励镀在钛蓝宝石基底上的金薄膜,获得了带宽为 0~2.5 THz 的太赫兹波,他们用金属的三阶非线性效应即四波混频机制解释该过程。这些实验成果证明了金属产生太赫兹波的可能性与潜

质,为本团队的工作奠定了基础。

近几年,本团队利用飞秒激光脉冲激发金属薄膜,从纳米孔结构发射出了强场(约 10 mW)、宽带(~150 THz)的太赫兹波,其具有高斯波阵面,并从能量、材料、频率、气体环境等多方面研究该过程的物理机制^[40-45]。本团队利用中国科学院沈阳科学仪器研制中心生产的 JGP600 型超高真空磁控溅射系统,将金属钌(Ru)、铂(Pt)、金(Au)等镀在有微纳表面结构的氧化物模板上,制备具有一定表面结构的金属薄膜。所用的阳极氧化铝模板(AAO 模板)为德国 Whatman 公司所生产,厚度为 60 μm,衬底上分布的纳米孔直径平均为 200 nm,空间占空比为 50%。通过扫描电子显微镜(SEM)观察样品的表面结构。图 1(a)~(c)是厚度为 150 nm 的钌膜(Ru)的表面结构和横截剖面与 AAO 基底的表面结构。可以看到金属样品表面具有比较复杂的纳米结构,包括纳米量级的孔洞和突起等,这种复杂的粗糙表面会提高泵浦激光的耦合效率,使其与泵浦激光相互作用更加充分,从而增加太赫兹波的产生效率。

使用图 1(d)所示的傅里叶变换迈克尔孙实验系统装置测定了具有纳米结构的钌(Ru)、铂(Pt)、金(Au)三种薄膜样品的辐射光谱。用一台中心波长为 800 nm、重复频率为 1 kHz、脉冲能量为 1.3 mJ 的钛蓝宝石飞秒激光放大器作为泵浦光源,出射光经焦距为 150 mm 的透镜聚焦,使光束在金属膜上会聚成直径为 6 mm 的光斑。金属膜样品后向辐射出的太赫兹波由镀金的离轴抛物面镜收集并准直进入迈克尔孙干涉系统。使用高莱探测器作为此次实验的太赫兹探测器,其在较宽的光谱范围内(0.1~150 THz)有着近乎平滑的响应曲线。

图 2(a)为测量到的钌(Ru)、铂(Pt)、金(Au)三种薄膜样品的辐射光谱,可以看到所得信号皆为超宽谱,其中钌(Ru)的信号频谱最宽,一直延伸到 150 THz。实验得到的由金属薄膜产生的超宽带太赫兹波可由辐射率修正的普朗克黑体辐射公式进行模拟^[46],公式为

$$I(\nu, T) = \epsilon \frac{2h\nu^3}{c^2} \times \frac{1}{e^{\frac{h\nu}{kT}} - 1}, \quad (1)$$

式中: $I(\nu, T)$ 表示物体辐射的功率; ϵ 为辐射率; h 是普朗克常数; k 是波尔兹曼常数; ν 是电磁辐射的频率; T 是物体的绝对温度。通过测量得到辐射率分别为 $\epsilon_{\text{Ru}}=91.8\%$, $\epsilon_{\text{Pt}}=90.8\%$, $\epsilon_{\text{Au}}=72.4\%$ 。图 2(b)为使用普朗克热辐射定律模拟的频谱。图 2(c)为红外热成像摄像机测定的用于仿真的温度数据,可以得出样品表面温度呈高斯分布,进而可以由高斯分布公式在整个积分照射区域计算总辐射光谱。这个过程可以理解为:由于金属薄膜样品表面具有纳米级粗糙度,可利用空气/固体界面的梯度折射率产生防反射效果,以及利用表面等离子体来提高金属膜对入射光的吸收^[47-49]。在激

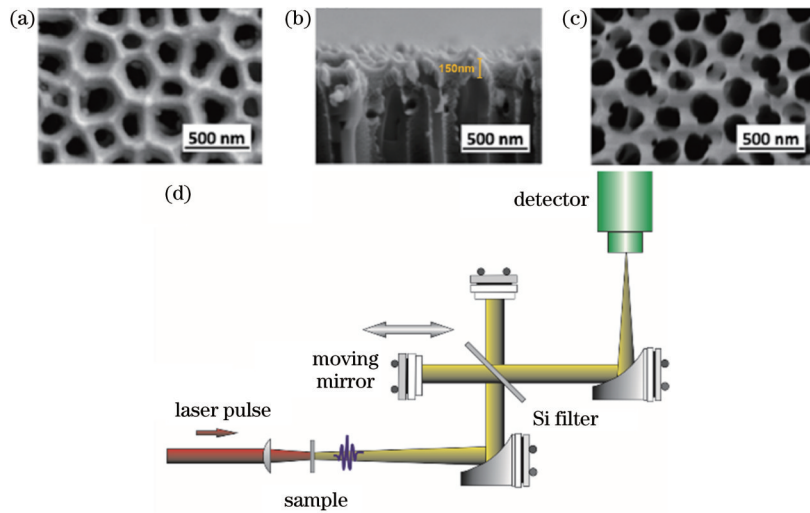


图 1 样品电镜照片与系统。(a)金属表面俯视图;(b)金属横截面图;(c)AAO模板衬底表面俯视图;(d)傅里叶变换迈克尔孙实验装置

Fig. 1 Electron micrographs of the sample and experimental system. (a) Top view of metal surface; (b) metal cross section; (c) top view of AAO substrate surface; (d) diagram of Fourier transform Michelson device

光脉冲照射下,被吸收的脉冲能量的小部分保留在热影响区,并作为剩余热能保存在样品里^[50-52]。该能量使

样品温度上升,当大的块体金属达到热平衡时,被加热的样品将用作热辐射源向外辐射太赫兹波。

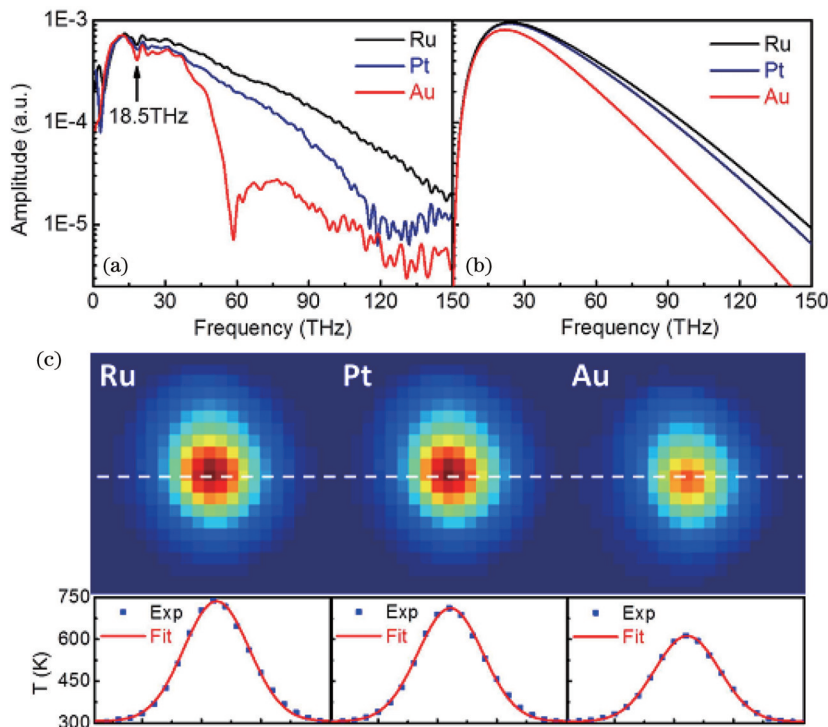


图 2 金属膜辐射太赫兹频谱^[40]。(a)实验结果;(b)理论模拟;(c)样品表面温度,下方为样品表面沿直径截线的温度分布

Fig. 2 Terahertz spectra radiated by metal film^[40]. (a) Experimental results; (b) theoretical simulation; (c) temperature of sample surface, below which is the temperature distribution along the diameter section

图 3(a)为利用傅里叶变换迈克尔孙干涉系统测得的金属钌(Ru)样品在不同泵浦光功率下的太赫兹频谱。可以看到随着泵浦光功率从 0.05 W 提高到 2.3 W,频谱带宽明显变宽,可以延伸到 150 THz。频谱由修正的普朗克黑体辐射定律进行模拟,结果如图 3(b)所示,可

以看出测量结果和模拟结果之间保持了良好的一致性,证明了热辐射是主要内在机制。使用红外热成像摄像机测量不同泵浦光功率下的样品表面温度,如图 3(c)所示,结果遵循高斯分布,说明泵浦光功率升高引起了样品表面温度升高,从而产生更强的热辐射。

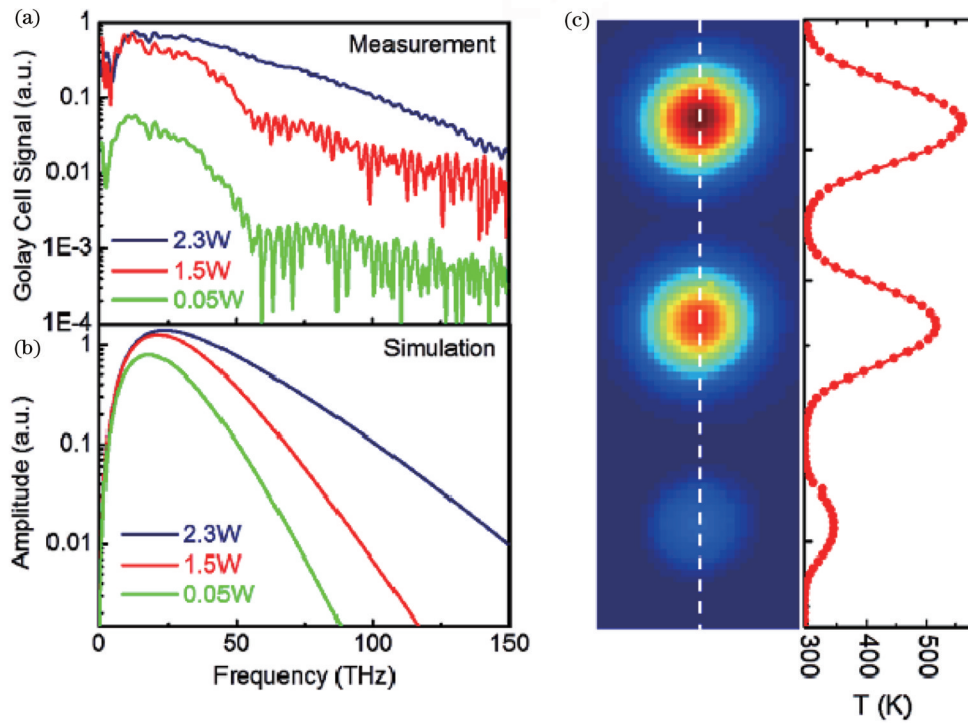


图 3 不同泵浦光功率下的太赫兹频谱^[43]。(a)实验结果;(b)理论模拟;(c)样品表面温度,右侧为样品表面沿直径截线的温度分布
Fig. 3 Terahertz spectra under different pump power^[43]. (a) Experimental results; (b) theoretical simulation; (c) temperature of sample surface, and the right shows the temperature distribution along the diameter section

为了完整表征热辐射特性,又探究了太赫兹辐射强度的空间分布,如图 4 所示。可以看出,金属样品薄膜所辐射的太赫兹能量形状为高斯分布。与飞秒激光

诱导空气等离子体产生的太赫兹波的中空光束轮廓^[53]相比,金属薄膜辐射的太赫兹波更适合于大尺寸物体遥感与成像应用。

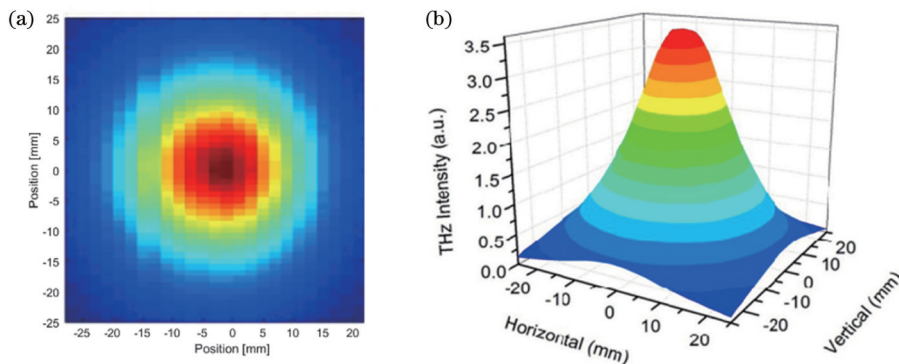


图 4 太赫兹强度分布^[43]。(a)二维扫描图;(b)三维网线图
Fig. 4 Intensity distribution of terahertz wave^[43]. (a) 2D scan diagram; (b) 3D diagram

通过控制磁控溅射的时间,得到一组具有不同厚度的金属膜样品,并通过扫描电子显微镜(SEM)观察不同厚度金属样品的表面形态结构。图 5(a)展示了厚度为 30, 100, 200 nm 的金属膜表面图像,可以看到随着厚度的增加,金属薄膜中纳米级空隙的平均直径逐渐减小。图 5(b)为不同厚度的金属薄膜对 800 nm 激光的吸收率,可以看出,金属膜的吸收率由于有了纳米级的粗糙度而得到显著提高,其中 100 nm 厚的金属薄膜所拥有的表面粗糙度对应了最强的吸收率,这暗示着表面等离子体效应的参与。

测量了不同厚度金属薄膜所辐射的太赫兹强度随泵浦光入射角的变化,如图 6(a)所示。图中每条曲线都是对称的,并且在入射角为 0° 时辐射强度达到最小值。图 6(b)显示了在 0° 时辐射强度与金属膜厚度的关系。很明显,100 nm 厚的样品具有最强的光吸收率,其辐射强度最大,这意味着更高的吸收率有助于更有效的热辐射。共振角与厚度的关系如图 6(b)所示,可以看到厚度为 100 nm 时,谐振角度最小。这些结果可以用表面等离子体激元的激发来解释。

进一步探究气体环境对太赫兹波辐射的影响。将

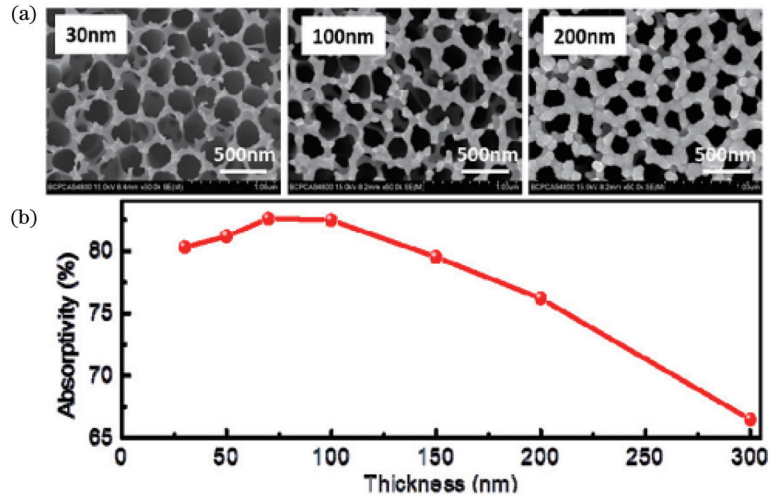


图 5 不同厚度金属薄膜的光学特征^[44]。(a)扫描电子显微镜(SEM)观察到的金属薄膜表面形态结构;(b)光吸收率随金属膜厚度的变化

Fig. 5 Optical characteristics of metal films with different thicknesses^[44]. (a) Scanning electron microscope (SEM) images of porous metal films with different thicknesses; (b) optical absorptivity as a function of the thickness of the porous metal films

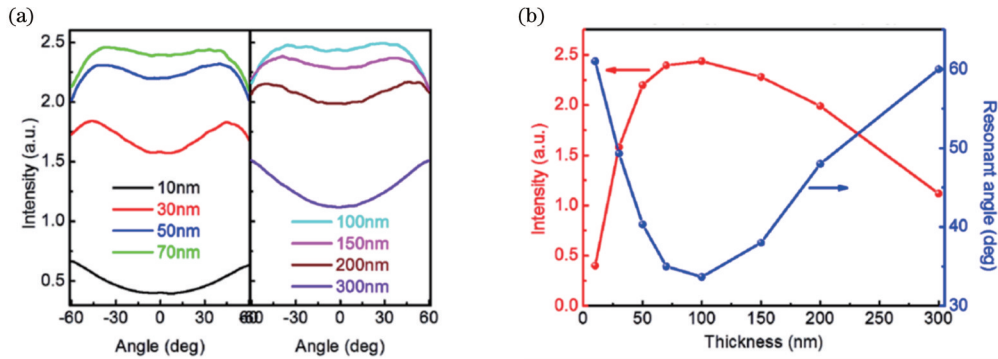


图 6 不同厚度的金属薄膜辐射太赫兹波^[44]。(a)不同厚度金属薄膜的太赫兹-红外热辐射强度随入射角的变化;(b)太赫兹-红外发射强度和共振角随金属膜厚度的变化

Fig. 6 Terahertz waves radiated by metal films with different thicknesses^[44]. (a) Measured THz-to-IR thermal radiation intensity as a function of the incidence angle emitted from nanostructured metal films with different thicknesses; (b) THz-to-IR emission intensity and resonant angle as a function of metal film thickness

金属样品放置在定制的可以精确控制气压的气室中。图 7(a)~(c)显示了各种惰性气体(He、Ne、N₂、Ar)包围的 100 nm 厚的钌(Ru)、铂(Pt)及金(Au)样品在不同气体压力下所辐射的太赫兹功率。可以看出:氩气导致了激烈的太赫兹辐射;当气体压力接近于零时,气体中的飞秒激光照射纳米结构金属膜可以增强太赫兹辐射。如图 7(d)是气压为 105 Pa 时所测量的太赫兹功率相对于气体原子数的变化,这暗示飞秒激光照射纳米结构金属时产生的太赫兹辐射可以通过在金属周围填充具有高导热率的气体来增强。同一气压下,热辐射功率随着气体的原子序数的增加而增加。此外,也可以通过降低气体压力显著增强太赫兹辐射。这种特性为超宽带的太赫兹技术的应用如高精度的气体传感器提供了新思路。

本节主要展示了激光激发金属薄膜辐射太赫兹波

的研究。与传统的光学整流方案相比,利用金属中等离子体产生太赫兹波的方案具有超宽带频率覆盖且无频率盲点的优势。由于诱导固体靶材辐射太赫兹波的激励源是具有千赫兹到兆赫兹重复频率的脉冲激光,这意味着每次发射太赫兹脉冲后固体靶材需要被刷新。然而,与光学整流晶体相比,固体等离子体中的电子产生和消亡通常需要更多的时间,因此输出太赫兹效率受到固体靶材退化的限制。通过使用更短的激励脉冲、引入迅速的冷却机制、引入高能电子补充机制来获得高峰值功率的太赫兹波是固体金属薄膜辐射太赫兹波的重要研发方向。固体中激光诱导等离子体的太赫兹辐射作为一种新的太赫兹辐射源仍在探索中。在理论指导下对辐射太赫兹波的光谱、偏振、角分布等特性进行调节,将会为金属薄膜中太赫兹辐射方案带来更多的应用空间。

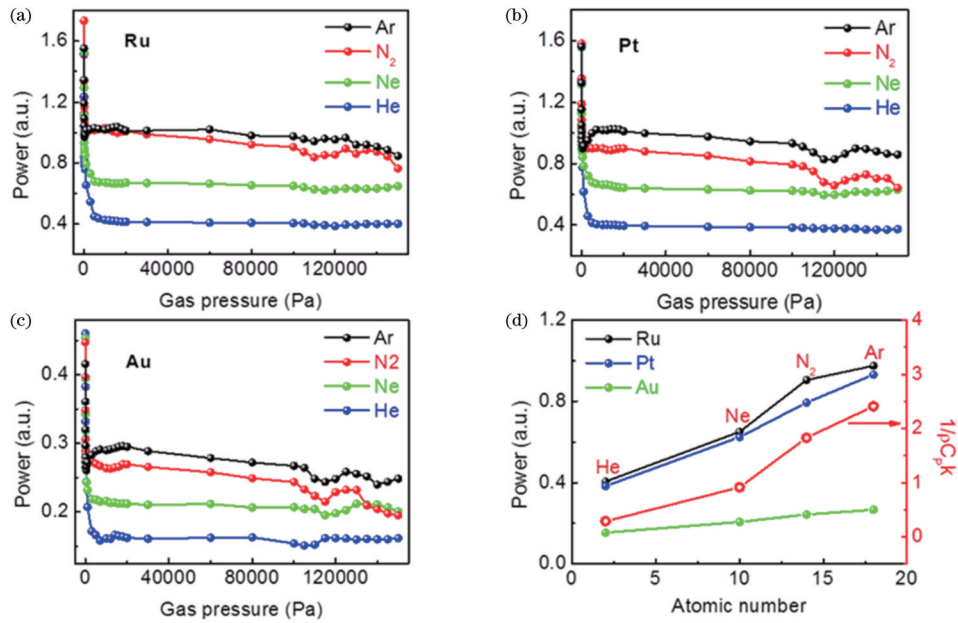


图 7 不同金属辐射太赫兹波^[45]。(a)~(c)钌、铂、金在不同气体中所辐射的太赫兹强度随气压的变化;(d)三种金属在气压 105 Pa 时辐射的太赫兹强度随气体原子数的变化

Fig. 7 Terahertz waves radiated by different metals^[45]. (a)~(c) Terahertz intensity radiated by Ru, Pt, and Au in different gases varying with atmospheric pressure; (d) terahertz intensity of three metals varying with number of gas atoms at pressure of 105 Pa

3 气体等离子体辐射太赫兹波

Hamster 等^[29-30]于 1993 年报道了飞秒激光激发空气等离子体产生太赫兹波的首次实验演示。他们用脉冲宽度为 10^{-13} s 的亚皮秒激光在空气中聚焦以产生等离子体,并从空气等离子体中观察到太赫兹波辐射。他们认为太赫兹产生机制与激光脉冲焦点处存在的质量动力学有关。他们使用流体动力学模型分析了焦区电荷的密度和加速度,并模拟了太赫兹远场辐射的方向。与单色激光激发的太赫兹源相比,双色激光可以获得相当大的太赫兹强度,这使得空气等离子体作为宽带太赫兹源成为现实。Cook 等^[31]首次利用四波整流方法从气体(空气、氮气和氩气)中产生强烈的太赫兹脉冲辐射。他们使用 β -硼酸钡(BBO)晶体产生二次谐波,当基波和二次谐波的峰值强度达 5×10^{14} W/cm² 时,观察到峰值为 2 kV/cm 的太赫兹场。他们证明这是一个相干过程,基波和二次谐波之间的相对相位对太赫兹场的振幅非常敏感。

随着研究人员加强对双色激光产生太赫兹波的研究,Petersen 等^[54]实现了对超短激光基频波、二次谐波和三次谐波的非线性混合,在亚 100 fs 激光脉冲中辐射从 12 THz 到 100 THz 的连续光。

此外,许多研究人员还关注如何调制等离子体。首先是改变飞秒激光激发的介质,研究人员系统地研究了惰性气体和碱金属蒸气^[55-57]辐射太赫兹波的特性;也探索了在激发空气的区域施加偏置电场的方向,这显著增强了单色激光激发空气后所发射的太赫兹强度^[58-62];同时,也有一些调制方法,例如将泵浦光从高

斯光改变为其他光束形式^[63],以及对等离子体进行预调制^[64-66]。总之,研究者们仍在寻找更有效的太赫兹源,且气体等离子体辐射太赫兹波的物理机制也在不断研究中。

3.1 长波长激光激发等离子体辐射太赫兹波

使用不同的泵浦激光器激发等离子体也是一个最新的研究手段。对于双色激光激发等离子体产生太赫兹波的方案,当使用较长波长的激光作为基频泵浦光时,产生的太赫兹辐射随泵浦激光波长的变化而改变。Clerici 等^[67]通过实验研究提出了一个可以很好预测太赫兹发射波长依赖性的模型。他们表明等离子体电流与泵浦波长的平方成比例增加,并且依赖于波长的聚焦条件的组合效应,最终 1800 nm 波长处的太赫兹辐射强度比 800 nm 波长处的高 30 倍。

本团队重点研究了长波长激光激发气体等离子体辐射太赫兹波的特征^[68-70]。通过改变泵浦光波长^[68]、激发介质^[69-70]等方法,太赫兹波的辐射能力得到了增强。使用的实验装置如图 8(a)所示,光参量放大器(TOPAS)输出波长在 1200~1600 nm 范围内可调谐的飞秒激光脉冲,长波长的飞秒脉冲经等效焦距为 4 inch(1 inch=2.54 cm)的离轴抛物面镜(PM1)会聚在空气中,用 100 μ m 厚的 BBO 晶体产生二次谐波。图 8(b)和图 8(c)给出了在不同波长的基频光束和二次谐波激励下,模拟和测量的太赫兹辐射能量随泵浦光功率的变化。可以看出:太赫兹强度随着泵浦光功率的增大而增强;在相同的泵浦功率下,长波长激光诱导的空气等离子体可以产生更强的太赫兹辐射;随着基频波功率的增加,长波长激光产生的太赫

兹能量比短波长激光产生的太赫兹能量增加得更快。

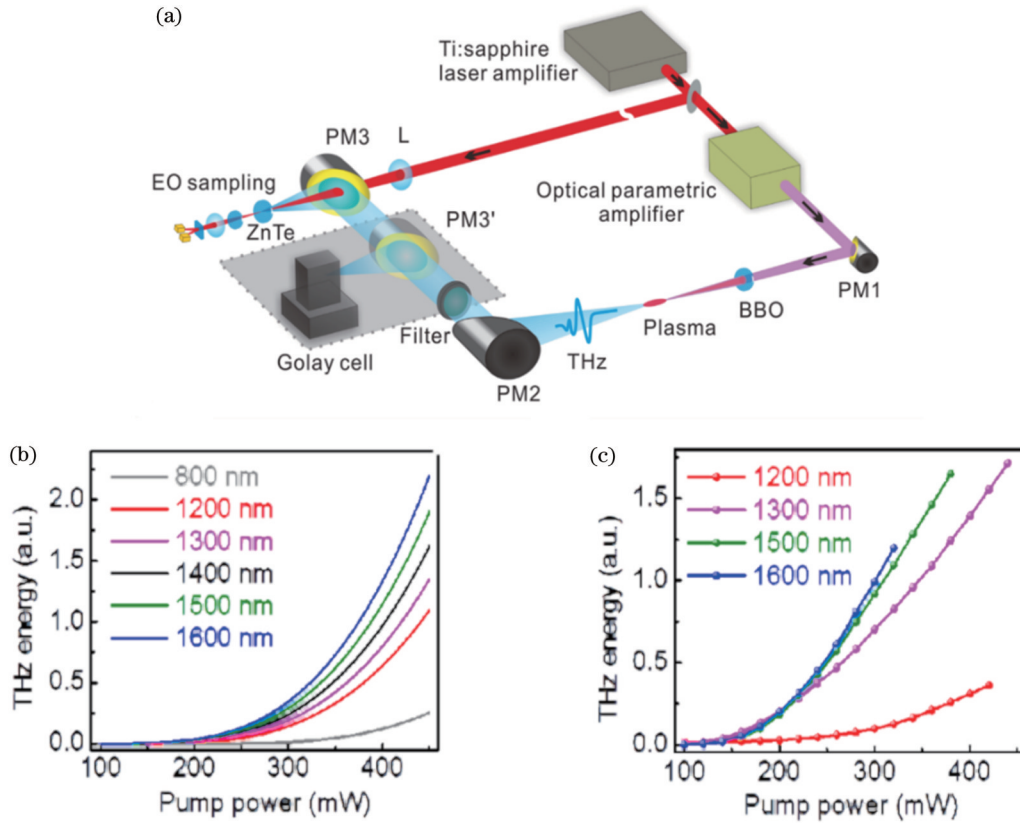


图 8 长波长激光激发气体等离子体辐射太赫兹波^[68]。(a)实验装置;(b)(c)模拟和测量的太赫兹波能量随入射光功率的变化
Fig. 8 Terahertz wave radiated by gas plasma excited by long-wavelength laser^[68]. (a) Experimental device; (b)(c) simulated and measured terahertz energy varying with incident pulse power

图 9(a)给出了对于不同波长的激发脉冲,模拟的电离率和泵浦光功率的关系。在相同泵浦功率下,激光的电离速率明显受波长影响,即波长越长,电离速率

越高。图 9(b)展示了模拟的太赫兹能量与泵浦光功率的关系。可以看出随着泵浦功率的增加,波长越长的激光所产生的太赫兹能量增加越快。

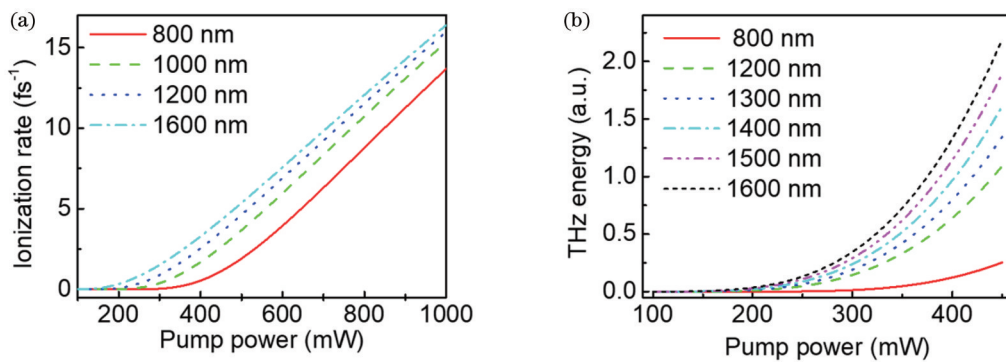


图 9 长波长激光激发等离子体辐射太赫兹波的功率依赖性^[68]。(a)不同波长激光的电离率随泵浦功率的变化;(b)太赫兹能量随泵浦功率的变化

Fig. 9 Power dependence of terahertz wave radiated by plasma excited by long-wavelength laser^[68]. (a) Ionization rate of different wavelength laser varying with the pump power; (b) terahertz energy varying with pump power

图 10(a)展示了不同泵浦光波长激光激发下太赫兹偏振的变化,可以看出 1200 nm 波长激光产生的太赫兹波近似为 -40° 方向上的线偏振光。对波长范围为 1200~1600 nm 条件下的太赫兹波强度进行归一化

处理,如图 10(b)所示,发现随着波长的变化,太赫兹偏振持续旋转。

用波长依赖的光电流模型来解释实验结果,如图 11 所示。可以看出,较长波长激光驱动的电流浪涌所

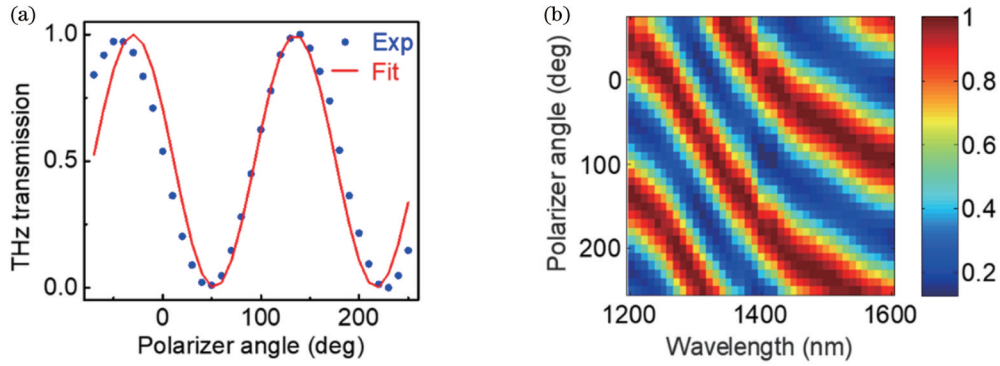


图 10 太赫兹波辐射的偏振特性^[68]。(a) 太赫兹透射率随线栅偏振器角度的变化; (b) 不同波长的太赫兹透射率随偏振角度的变化
Fig. 10 Polarization characteristics of terahertz wave radiation^[68]. (a) Terahertz transmittance varying with the angle of the grid polarizer; (b) terahertz transmittance varying with polarization angle at different wavelengths

发射的太赫兹波向较高中心频率发生偏移, 这导致太赫兹脉冲宽度更窄、聚焦能力更强, 进而产生更强的太赫兹电场。

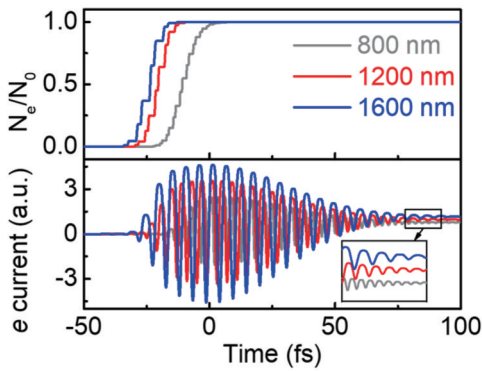


图 11 在 800, 1200, 1600 nm 三种激发波长下, 归一化的自由电子密度(上)和电子电流(下)随时间的变化
Fig. 11 Changes of normalized free electron density (above) and electron current (below) with time excited by 800, 1200, 1600 nm laser

通过快速傅里叶变换, 得到了太赫兹波的相应频谱, 如图 12(a) 所示。光电流模型的模拟结果如图 12(b) 所示, 表明激光诱导空气等离子体产生的太赫兹波

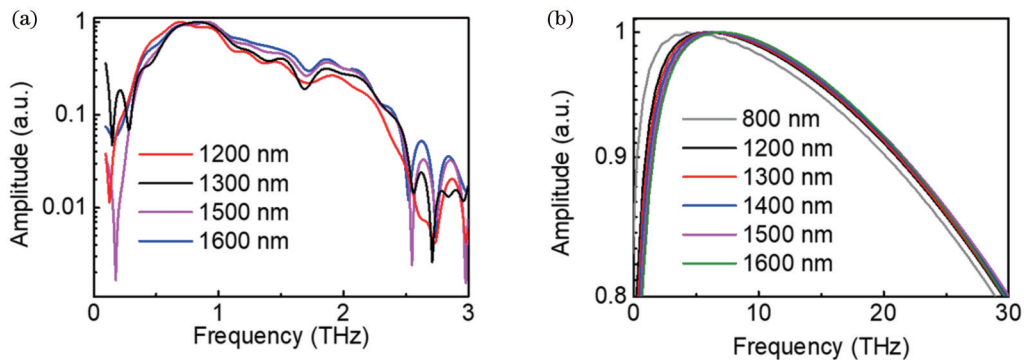


图 12 太赫兹频谱。(a) 不同波长激光下太赫兹频谱的归一化; (b) 不同波长激光下太赫兹频谱的归一化模拟
Fig. 12 Terahertz spectra. (a) Normalization of terahertz spectra with different laser wavelengths; (b) normalized simulation of terahertz spectra with different laser wavelengths

的频谱宽度随波长的增大而增加。由于电子的平均动能与驱动激光波长的平方成正比, 因此使用更长波长激光驱动的电涌更强, 所辐射的太赫兹波的中心频率更高。

3.2 预电离等离子体对太赫兹波调制

在空气介质中产生太赫兹波的主要机制是激光诱导空气等离子体中的非线性过程。如果激光脉冲在预处理的等离子体背景中被激发, 由于更多的激光能量转换成太赫兹辐射, 将期望获得更强的太赫兹波。Xie 等^[64]将另一束激光激发的等离子体作为背景时, 双色场激发空气产生的太赫兹辐射将增加, 太赫兹波的幅度在几百皮秒内增加, 最大增强可以达到 250%。2010 年, Wen 等^[65]通过使用预电离等离子体调节双色场的相对相位, 实现了宽带太赫兹频率的高速全光偏振开关。2017 年, He 等^[71]通过预电离等离子体使双色光丝产生太赫兹波的光谱调制, 他们发现平行偏振的局域激光强度比垂直偏振的局域激光强度强, 这种非线性干扰可以调制太赫兹频谱。

先前对预电离等离子体的研究主要集中在激发波长为 800 nm 的飞秒激光上^[71-72], 然而, 尚未研究不同激发波长对太赫兹波辐射的影响。本课题组报道了预电离等离子体在不同波长泵浦光下产生的太赫

兹波的强度和偏振调制的内容,发现太赫兹波能量的调制深度和偏振度随着激发波长的增加而增加,并提出了一种波长依赖的修正光电流模型来解释实验现象^[73-75]。采用的实验装置如图 13(d)所示。一束能量为 1.8 mJ 的 800 nm 激光脉冲作为调制光聚焦于凸透

镜,从而产生一个预电离的空气等离子体,该等离子体光丝与双色激光诱导的光丝水平正交。将预电离光丝与双色光丝在不同位置相交,并探测预电离等离子体对不同波长光产生的太赫兹波特征的调制作用。

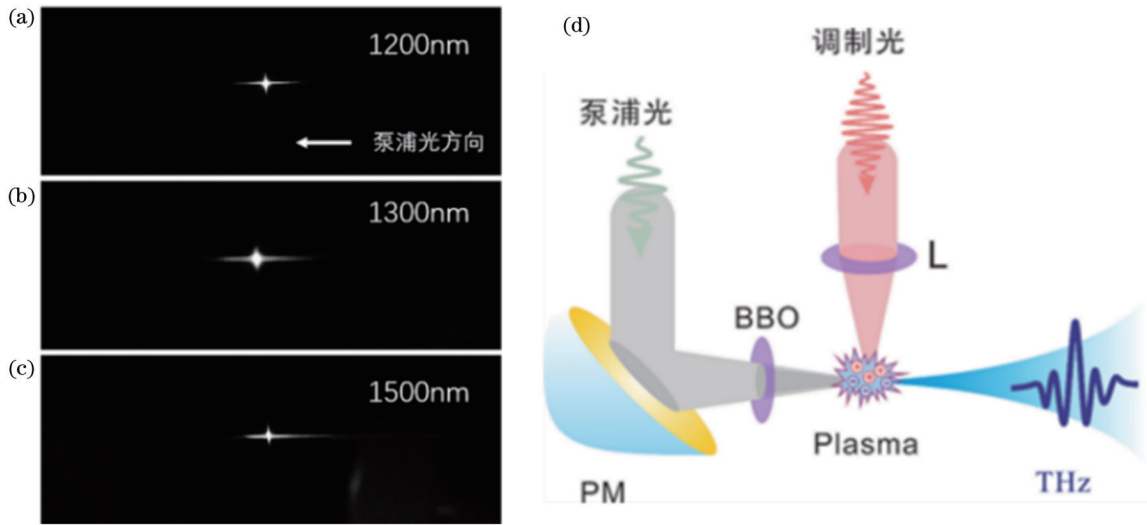


图 13 飞秒激光调制等离子体^[73]。(a)~(c) 1200,1300,1500 nm 光丝相交照片;(d)实验装置

Fig. 13 Femtosecond laser modulated plasma^[73]. (a)-(c) Photos of 1200, 1300, 1500 nm laser filament intersection; (d) experimental device

将波长为 800 nm 的调制脉冲所产生的预电离等离子体光丝与长波长的双色场光丝垂直相交,进而调制太赫兹波的辐射能量。两束光丝相交照片由一个 CCD 相机拍摄,如图 13(a)~(c)所示。

图 14 为 1300 nm 和 1500 nm 泵浦激光产生的太赫兹波曲线。在 $t=0$ ps 之前预电离等离子体尚未存在,1500 nm 波长所产生的太赫兹波强度更强。当 800 nm 预电离空气等离子体存在时,在 $t=0$ ps 附近的双色场产生的太赫兹能量显著降低,并且 1500 nm 激光所产生的太赫兹能量降低得更多。

进一步探究了预电离等离子体影响下太赫兹调制

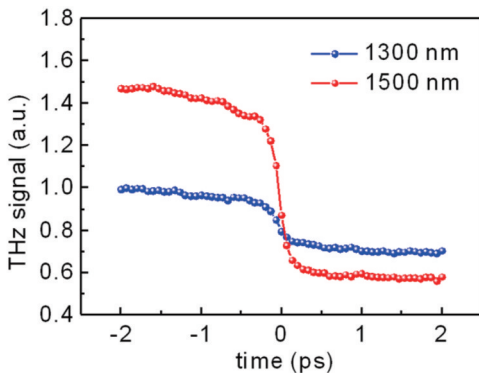


图 14 太赫兹能量随预电离等离子体调制脉冲的时间的变化^[73]

Fig. 14 Terahertz energy varing with time of pre-ionized plasma modulation pulse^[73]

深度的波长和功率依赖性,发现较长的波长激光产生较强的太赫兹波,并且在预电离等离子体存在后抑制到较低的能量。在不同泵浦波长下,太赫兹调制深度随 800 nm 调制脉冲功率的变化而变化,如图 15(a)所示,对于同一激发波长,调制光功率越大,调制深度越大。太赫兹调制深度也与激发波长有关,如图 15(b)所示,在相同的激光功率下,激光波长越长,太赫兹调制深度越大。本课题组认为这种现象发生的原因是:调制光脉冲先电离空气等离子体,环境空气中的大多数原子被 800 nm 预脉冲电离,留下很少的中性粒子,利用双色波长脉冲进行用于产生太赫兹辐射的光电离,从而抑制太赫兹辐射的产生。用光电流模型模拟了该过程,如图 15(c)和图 15(d)所示,模拟的太赫兹能量调制深度随调制光功率的增加而增加,太赫兹波的调制深度随激光波长的增加而增加。太赫兹波调制深度增加的速度随调制光功率的增加而变慢,并逐渐趋于饱和,这是因为在双色脉冲到达之前,空气被 800 nm 的调制光完全电离。

进一步展示了归一化的太赫兹偏振角的变化曲线,并提取了有/无预电离等离子体时的偏振曲线的极大位置差,如图 16(a)~(c)所示。图 16(d)展示了不同波长下太赫兹波偏振旋转角随调制光功率的变化,可以看到旋转角度随着调制功率的增大而增大,且激发波长越长,旋转角度越大。

由于等离子体中电子轨迹的相干操纵,双色激光诱导空气等离子体时产生的太赫兹波的偏振可以随着

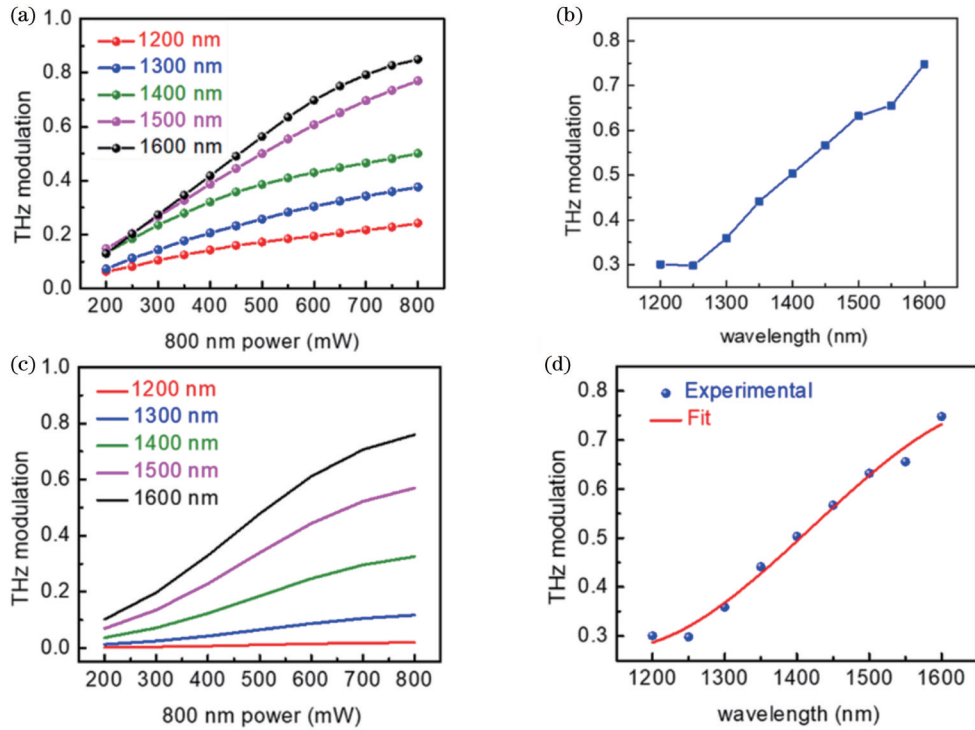


图 15 太赫兹波调制深度的波长和功率依赖性^[73]。(a)不同泵浦波长下,太赫兹波调制深度随800 nm调制脉冲功率的变化;(b)太赫兹波调制深度随泵浦激光波长的变化;(c)模拟的太赫兹波调制深度与800 nm调制光功率的关系;(d)太赫兹波调制深度随泵浦激光波长变化的模拟结果与实验结果对比

Fig. 15 Wavelength and power dependence of THz modulation depth^[73]. (a) Variation of THz modulation depth with 800 nm pulse power at different pump wavelengths; (b) modulation depth of terahertz wave varying with the pump laser wavelength; (c) relationship between simulated THz modulation depth and 800 nm modulation power; (d) comparison between simulation results and experimental results of terahertz modulation depth changing with pump laser wavelength

双色场之间相对相位的变化而发生连续旋转。本课题组将太赫兹波的偏振旋转归因于预电离空气等离子体在双色场之间引入的附加相位差。当双色场通过预电离等离子体时,产生的附加相位 $\Delta\varphi$ 可以表示为

$$\Delta\varphi = \omega_l \left(\sqrt{1 - \omega_p^2/4\omega_l^2} - \sqrt{1 - \omega_p^2/\omega_l^2} \right) d/c, \quad (2)$$

式中:等离子体频率 $\omega_p^2 = N_e e^2 / \epsilon_0 m$ 由等离子体电子密度 N_e 决定,因此,附加相对相位 $\Delta\varphi$ 与波长 l 处基频激光的角频率 ω_l 和预电离等离子体的电子密度 N_e 相关。电离率 $\omega(t)$ 影响电子密度,并决定了预电离等离子体引入的附加相对相位。

3.3 非正常频率比的双色场产生太赫兹波

在广泛研究的双色场激发气体产生太赫兹辐射方案中,两种激光的频率比(ω_2/ω_1)通常固定为1:2。本课题组研究了具有不寻常频率比的太赫兹辐射产生,并且通过实验首次得出了在激光的频率比为1:4和2:3下产生了有效的太赫兹辐射的结论^[76]。

图 17(a)显示了实验装置的示意图,长波长激光选取 1200 nm,混合 800 nm 脉冲后即可形成频率比为 2:3 的双色场。混合 1600 nm 脉冲和 400 nm 脉冲,即可形成频率比为 1:4 的双色场。利用迈克尔孙干涉系统,测得太赫兹辐射的自相关信号如图 17(b)所示。

自相关信号表明,频率比为 1:4 和 2:3 的双色场也能激发空气等离子体进而辐射太赫兹波。与传统配比 1:2 相比,频率比为 1:4 和 2:3 的激光辐射太赫兹峰值功率分别约为 30% 和 10%。固定波长 $\lambda_1=800$ nm 激光脉冲不变,改变另一束脉冲波长,观察太赫兹辐射强度随波长 λ_2 的变化,如图 17(c)所示,可以看出: $\lambda_2=1600$ nm 时,有一个很强的峰,此时双色场频率比为传统的 1:2;在 $\lambda_2=1200$ nm 时,有一个强度约为 10% 的小峰,此处便是双色场频率比为 2:3 的太赫兹波辐射;当固定波长 $\lambda_1=400$ nm 激光脉冲不变,可以看到 $\lambda_2=1600$ nm 时,有一个强度约为 30% 的峰,此处是双色场频率比为 1:4 的太赫兹波辐射。对实验中双色场产生太赫兹辐射的过程进行了等离子体粒子(PIC)模拟,结果如图 17(c)和图 17(d)所示。近场辐射的模拟结果和远场辐射中测得的实验结果一致,这表明远场辐射主要来自脉冲强度最高的一小段等离子体区。

分别观察竖直(Ver.)和水平(Hor.)分量上的太赫兹波能量,如图 18 所示,通过旋转 ω_2 脉冲的偏振可以调整太赫兹波的偏振。当 1600 nm 脉冲偏振从图 18(a)中的水平方向旋转到垂直方向时,太赫兹波强度的水平分量不断减弱,垂直分量先增强后减弱,图中的模拟也证明了这些结果。图 18(b)~(d)也分别展示了太

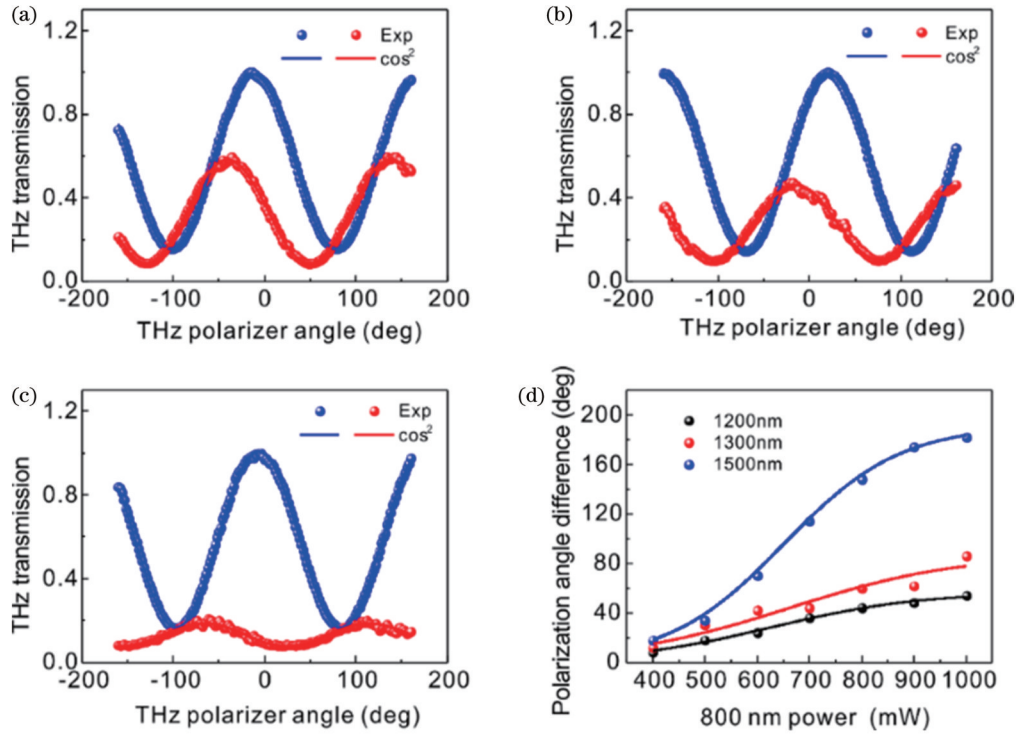


图 16 太赫兹透过率的偏振特性^[73]。(a)~(c)有/无预电离等离子体时,激发波长为 1200,1300,1500 nm 的太赫兹波透过率随线栅偏振片角度的变化;(d)在 1200,1300,1500 nm 波长激发下,太赫兹波偏振角与预脉冲功率的关系
Fig. 16 Polarization characteristics of terahertz transmittance^[73]. (a)~(c) With/without pre-ionized plasma, the terahertz transmittance at excitation wavelengths of 1200, 1300, 1500 nm varying with the polarization angle of the linear grid polarizer; (d) relationship between the polarization angle of terahertz wave and the pre-pulse power under 1200, 1300, 1500 nm wavelength excitation

赫兹能量的水平和垂直分量分别随 400,1200,800 nm 脉冲偏振角的变化。

对于频率比为 1:4 和 2:3 的两组实验,通过分别改变激光功率,进而观察太赫兹辐射的能量变化。实验结果和模拟结果如图 19(a)~(d)所示,可以看到每条曲线在开始阶段都表现为线性依赖关系,与模拟结果符合良好。曲线在频率比为 1:4 和 2:3 两种情况下都表现出复杂的依赖关系,太赫兹能量对激光功率的依赖性与多波混合理论预测的 $(P_1)(P_2)^4$ 和 $(P_1)^3(P_2)^2$ 标度有很大的偏差,这可以归因于电离速率对激光强度的复杂依赖性。对于两个脉冲具有同样偏振的情况, $(\partial|E_L|/\partial\psi)(\psi_0)=0$,可以得到

$$A_{L,x}(\psi_0) = a_1 c f(\psi_0) \cos(\omega_1 \psi_0) [1/\omega_1 - \omega_1/\omega_2^2], \quad (3)$$

$$\text{或 } A_{L,x}(\psi_0) = a_2 c f(\psi_0) \cos(\omega_2 \psi_0) [1/\omega_2 - \omega_2/\omega_1^2], \quad (4)$$

因此 $|A_{L,x}(\psi_0)|$ 与 a_1 或 a_2 成线性关系。在图 19 中的每条曲线的起始阶段,无论频率比是 1:4 还是 2:3,都可以观察到这种线性关系。PIC 模拟和等离子体电流模型很好地解释了上述观测结果,为明晰空气产生太赫兹波的内在机制提供了新的思路。

3.4 气体等离子体辐射太赫兹波的优化方案

多色场方案 研究人员一直在探索多色激光场是否能获得比双色激光器更强信号的内容^[77-80]。de Alaiza Martínez 等^[77]探究了锯齿波形激光场电离气体

时太赫兹波的产生。通过使用多频激光脉冲,可以获得优化的自由电子轨迹波形,以获得最大漂移速度,从而将太赫兹转换效率提高到 2%。他们认为太赫兹能量不仅取决于电离电子的数量,还取决于泵浦场的波形。锯齿波形使电离瞬间附近的自由电子速度最大化,这增加了电流的不对称性。与标准的双色场方案相比,他们的方案显著提高了太赫兹转换效率。此外, Lu 等^[36]从理论上证明,通过调整激光波长可以有效控制三色激光与气体相互作用时太赫兹光谱的产生,总体太赫兹强度保持在相对较高的水平,甚至可以大幅增加。Sorenson 等^[78]通过添加 800 nm 脉冲增强了双色等离子体的太赫兹波产生,使用这种方法,他们观察到太赫兹电场增强了 30 倍。

特殊光束方案 与研究人员一直使用的高斯激光束不同, Liu 等^[63]利用了空间光调制器,将钛宝石激光脉冲高斯光束变成了环形艾里斑分布。他们证明在相同条件下,这种突然自聚焦光束(AAF)诱导的空气等离子体产生的太赫兹波比正常高斯光束诱导的太赫兹波脉冲能量高 5.3 倍,这可能是等离子体长度的显著差异引起的。在 AAF 光束和高斯光束之间的太赫兹辐射光谱存在显著变化,这可能是相应等离子体之间的等离子体密度差异导致的。

本节主要展示了激光激发空气等离子体辐射太赫兹波的研究进展。空气等离子体中影响太赫兹波辐射

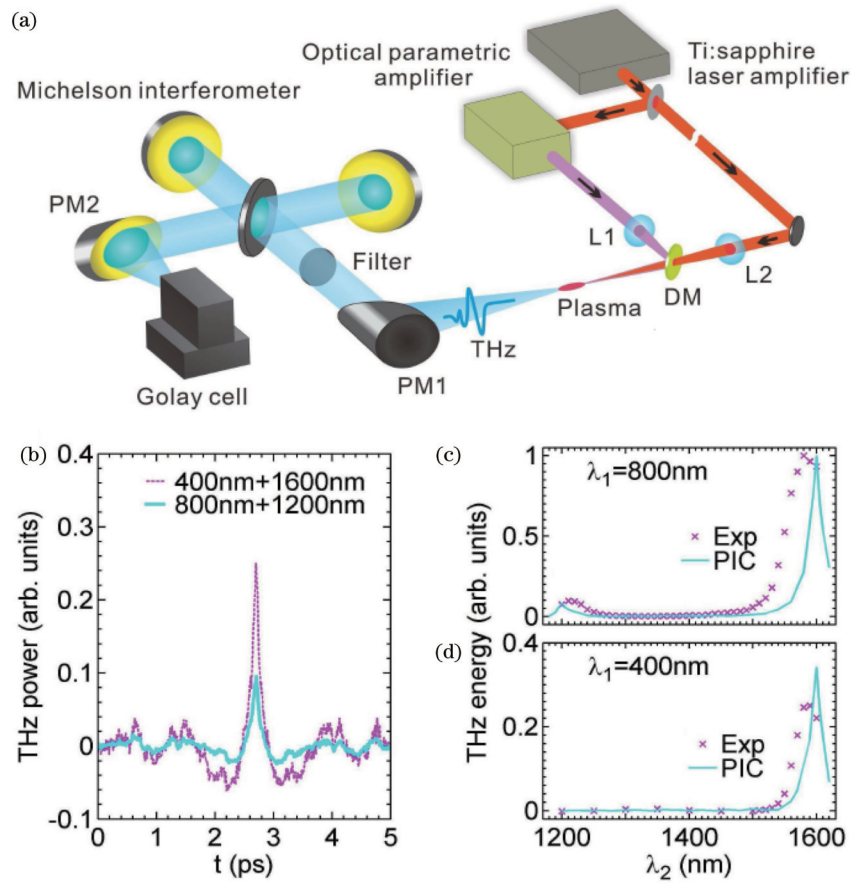


图 17 非寻常频率比的双色场产生太赫兹波^[76]。(a)实验装置;(b)双色场频率比为 1:4 和 2:3 时的太赫兹自相关信号;(c)(d)当一束脉冲固定在波长为 $\lambda_1=800\text{ nm}$ 和 $\lambda_1=400\text{ nm}$ 时,太赫兹波强度随另一束脉冲波长 λ_2 的变化
 Fig. 17 Terahertz wave generated by two-color field with unusual frequency ratio^[76]. (a) Schematic of experimental device; (b) terahertz autocorrelation signal when the frequency ratio of two-color field is 1 : 4 and 2 : 3; (c)(d) when one pulse is fixed at the wavelength of $\lambda_1=800\text{ nm}$ and $\lambda_1=400\text{ nm}$, the change of terahertz intensity with the other pulse wavelength of λ_2

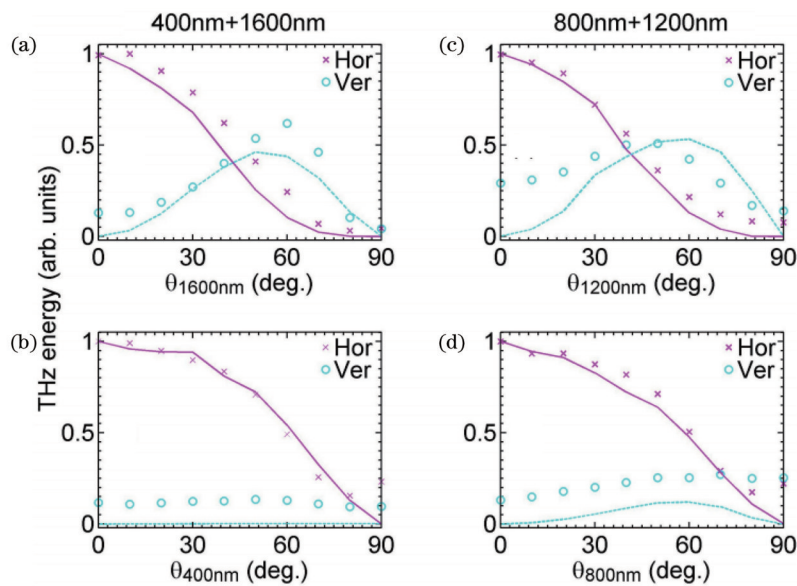


图 18 太赫兹波的偏振特性^[76]。(a)~(d)太赫兹能量的水平分量和垂直分量分别随 1600,400,1200,800 nm 脉冲的偏振角的变化
 Fig. 18 Polarization characteristics of terahertz wave^[76]. (a)~(d) Horizontal and vertical components of terahertz energy changing with the polarization angle of 1600, 400, 1200, 800 nm pulse respectively

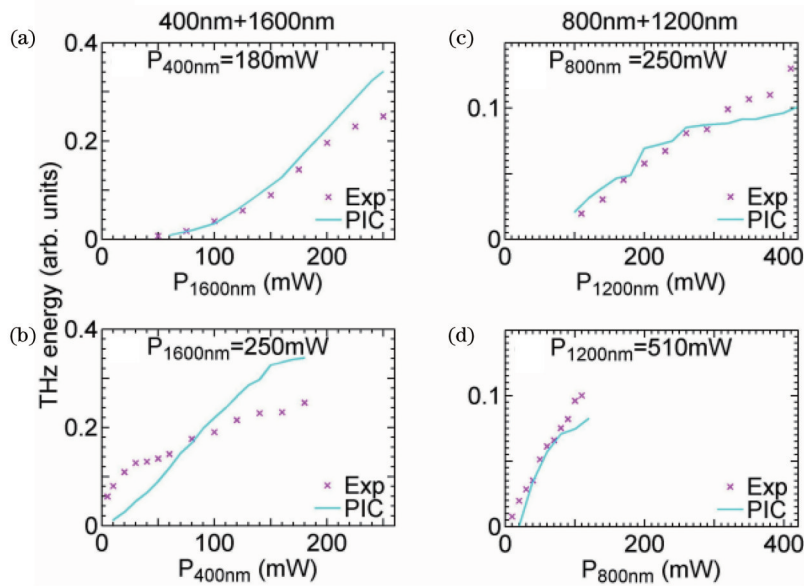


图 19 太赫兹波的功率依赖性^[76]。(a)~(d)太赫兹能量分别随 1600, 400, 1200, 800 nm 脉冲功率的变化

Fig. 19 Power dependence of terahertz wave^[76]. (a)~(d) Terahertz energy changing with the power of 1600, 400, 1200, 800 nm pulse respectively

的因素非常复杂,这虽然极大增加了学者们对其物理本质探索的难度,但也为太赫兹辐射的灵活操控提供了机遇。三十多年来,学者们在光激发等离子体的产生条件上做了大量研究,从单色场到双色场、从单脉冲到多脉冲、从常规环境到高压电场环境、从寻常频率配比到非寻常频率配比、从高斯光束到各种特殊光束等。例如碱金属气体、惰性气体、高压气体等方案相比普通空气,都表现出良好的幅值增益。总体来说,更大的辐射强度、更大的覆盖带宽是目前工作的主流追求。在理论方面,在大量实验工作的推动下,偶极子模型、有质动力模型、四波混频模型、光电流模型、PIC 模拟也相继为空气等离子体中太赫兹波辐射现象提供了新的见解。气体等离子体受到诸多复杂因素的影响,为调控太赫兹波辐射提供了更多的自由度。在日渐成熟的理论指导下,认为在“更强”“更宽”之外,“更可控”或可成为一个新的探索方向。对太赫兹波偏振旋转、频率分布、频率转化、辐射方位、波前相位等一系列光学参数的精准控制,将会为太赫兹技术在大容量通信、动力学分析、高密度存储、太赫兹全息成像、量子技术等方面带来新的助力。

4 液体等离子体辐射太赫兹波

液体,尤其是液态水产生太赫兹波被认为是不可能的。液体(包括水和其他材料)作为太赫兹辐射源的研究鲜有报道。2017年,Dey等^[38]报道,利用超短激光光丝,可以从液体中产生宽带太赫兹波。单色场激发液体辐射的太赫兹能量比由空气中双色场光丝获得的太赫兹波高 1 个数量级以上。这种高能量太赫兹波将产生 MV/cm 量级的电场,这为各种非线性太赫兹光谱应用

打开了大门。Kolesik等^[81-82]对通用脉冲传播方程进行了一系列模拟,观察到当泵浦功率达到一定值时,液体中会开始形成从紫外到太赫兹的非常宽的脉冲光谱。与基波混合的二次谐波通过四波混频过程和不对称等离子体电流机制产生部分太赫兹光谱,这与空气中双色场产生的太赫兹波辐射相似。Balakin等^[83]选择液氮作为太赫兹辐射的产生介质,在太赫兹、可见光和近红外范围内,液氮具有良好的透明度。他们首次观察到激光激发液化气体产生的太赫兹波,并表明介质的电离及其非线性极化率在太赫兹产生中起着重要作用。

为了减少太赫兹波的损失,厚度小于 1 mm 的水膜是研究太赫兹波产生的优质选择。2017年,Jin等^[37]证明飞秒激光脉冲激发的液态水膜可以产生宽带太赫兹波。他们将中心波长为 800 nm 的飞秒激光聚焦在水膜上,使用电光采样和 3 mm 厚的 ZnTe 来检测太赫兹脉冲。在相同的激发条件下,水膜产生的太赫兹场比空气等离子体产生的太赫兹波强 1.8 倍。自由流动的重力驱动薄膜已成功地应用于液态水产生太赫兹波的研究中。此外,具有蓝宝石表面的染料激光器喷嘴可以形成非常均匀的液体射流。这些装置可以在自由空间中产生薄、连续和稳定的液态水膜,这为太赫兹辐射提供了可靠的液体源。

4.1 液态水辐射太赫兹波

本团队也开展了关于液态水产生太赫兹波的研究^[84-86],探索了激光激发下水膜和水线产生太赫兹波的特性,并进一步提高了太赫兹波的辐射效率。

实验系统如图 20(a)所示,利用无窗水膜装置可以产生连续稳定的水膜,如图 20(b)所示。800 nm 飞秒激光激发水膜和空气所产生的太赫兹波时域波形如

图 20(c)所示,可以看出在相同的实验条件下,水膜产生的太赫兹波振幅为空气等离子体产生的太赫兹波振幅近 2 倍。相应的水和空气产生的太赫兹辐射频谱如

图 20(d)所示,可以看到水的太赫兹辐射具有更多的低频成分和更少的高频成分。此外,水产生太赫兹辐射的频谱带宽比空气等离子体的带宽要窄。

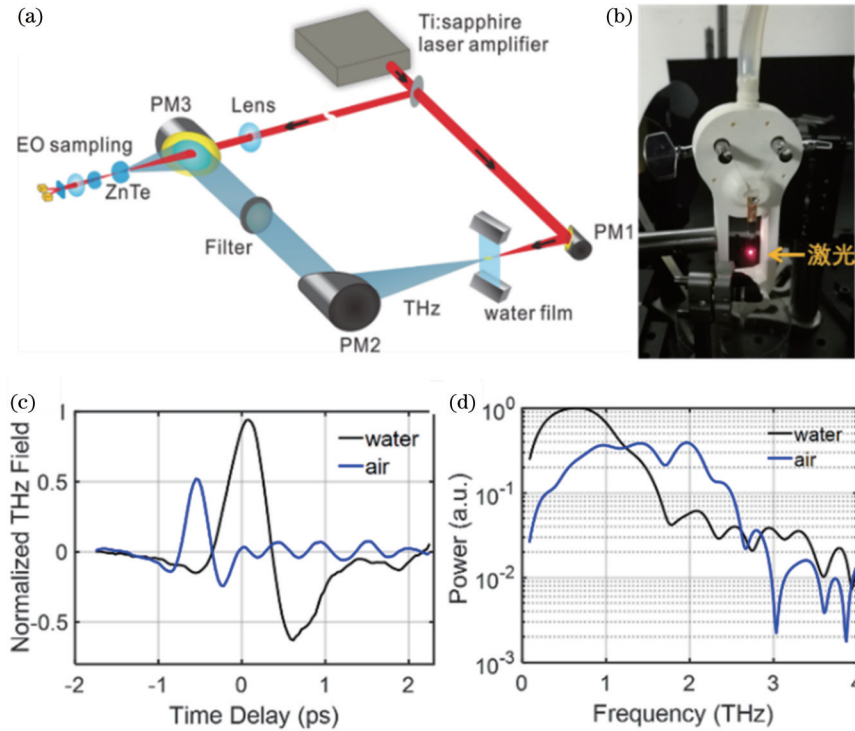


图 20 液体等离子体产生太赫兹波^[84]。(a)实验系统装置;(b)激光聚焦在水膜上的照片;(c)(d)水和空气等离子体的时域波形和对应的频谱

Fig. 20 Terahertz wave generated by liquid plasma^[84]. (a) Diagram of experimental system; (b) photos of laser focusing on water film; (c)(d) terahertz time domain waveforms from water and air plasma and the corresponding spectra

为了证明观察到的太赫兹辐射主要是由水膜产生的,测量了水膜不同位置处的太赫兹辐射。通过图 21 中曲线 A 到 D 的对比可以看出:曲线 C 中水对太赫兹辐射的吸收较大;只有曲线 B 显示了增强的太赫兹辐射,这对应着水所产生的太赫兹波。

进一步探究了太赫兹波辐射与泵浦光偏振的关系,并展示了太赫兹能量的水平分量(P-偏振)和垂直分量(S-偏振)随泵浦光偏振角的变化,如图 22 所示。其中方块和圆点分别表示为实验测得的太赫兹能量的水平和垂直分量,曲线为 $\cos^2\theta$ 的拟合结果。可以看到

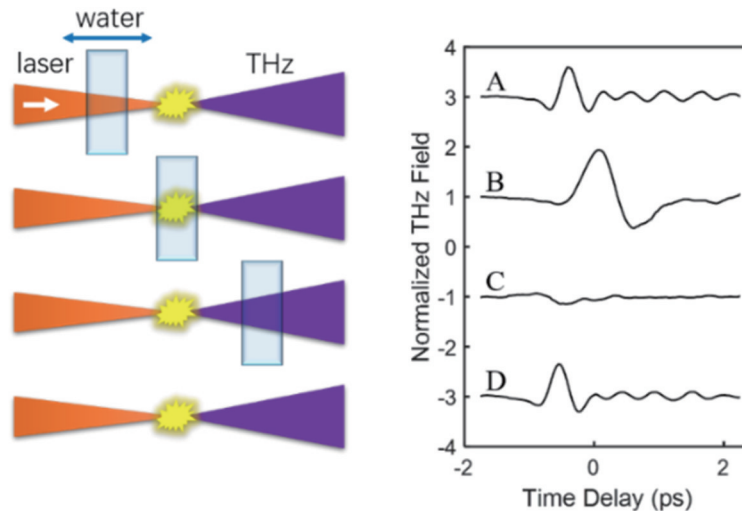


图 21 不同位置处水膜所辐射的太赫兹波^[84]

Fig. 21 Terahertz wave radiated by water film at different positions^[84]

水平偏振的泵浦光产生较强的太赫兹辐射,而垂直偏振的泵浦光产生较低的太赫兹辐射。本课题组认为激光电场在水膜内光电离,光场有质动力诱导电流在水膜/空气界面附近的对称性被破坏,从而产生净电流,并向远场辐射太赫兹波。对于水平偏振的泵浦光,有质动力引起的电子运动在水膜的横截面上,这使得有质动力引起的正、负电流是不对称的,从而会产生净电流。当光束沿着水膜流动方向作垂直偏振时,电子将沿着水膜流动方向移动,因此在正、负电流保持对称,净电流消失的情况下,不能产生太赫兹脉冲,这和实验结果是一致的。

应用水膜产生太赫兹波时,需要将水膜与入射激光成一定的角度,破坏光电流在界面的对称性。然而,太赫兹信号会被侧向的毫米宽的水强烈吸收,此外,在水膜/空气界面处的反射将显著降低太赫兹信号。因此,实验需要进一步改变液体的形态,应用水线代替水膜作为太赫兹辐射源,圆形的水线界面消除了液体/空气界面的反射,并且增加了有质动力诱导电流的不对称性,有望可以增强太赫兹波的产生。实验装置如图 23 所示,激光沿 $+z$ 方向入射,水线沿 $+y$ 方向流动,水

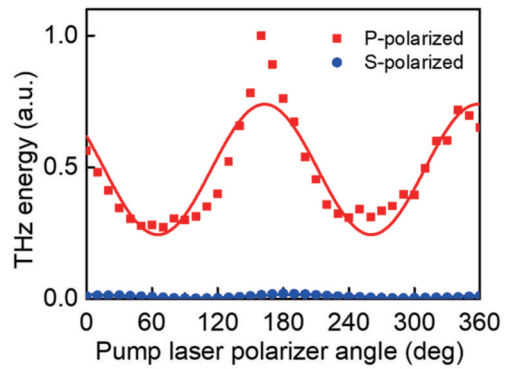


图 22 水平和垂直方向的太赫兹波能量随泵浦光偏振角的变化^[84]

Fig. 22 Changes of terahertz wave energy in horizontal and vertical directions with polarization angle of pump pulse^[84]

线的直径约为 $200\ \mu\text{m}$ 。图 24(a) 显示了水线产生的太赫兹脉冲的时域波形。发现水线产生的太赫兹脉冲的场强为 $0.15\ \text{MV}/\text{cm}$, 比来自水膜和空气的太赫兹信号分别高 20 倍和 100 倍, 分别如图 24(b) 和图 24(c) 所示, 对应的太赫兹光谱如图 24(d) 所示, 可以观察到水线的光谱最窄, 而空气的光谱最宽。

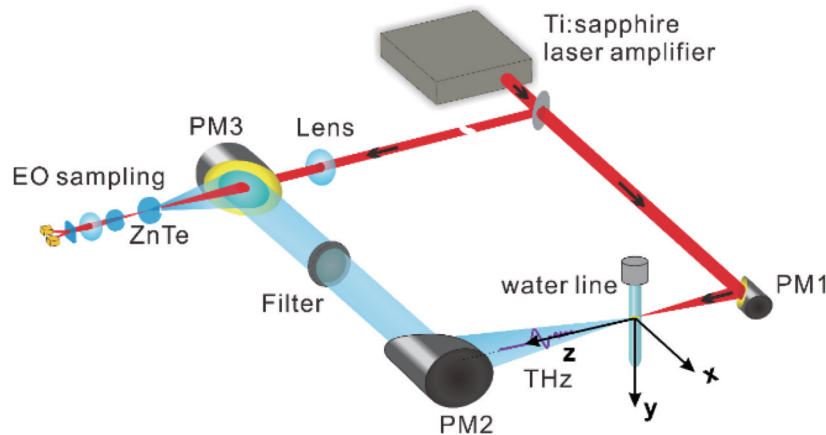


图 23 水线产生太赫兹波的实验装置^[85]

Fig. 23 Schematic of experimental device for generating terahertz wave by water line^[85]

发现当激光聚焦在与水柱中心对称的两个位置时,太赫兹时域波形的振幅大致相等,如图 25(a) 所示,但两者的电场方向相反。当激光聚焦在水柱中心时,没有观察到太赫兹脉冲的产生,如图 25(b) 所示。本课题组提出一种激光有质动力诱导电流模型来解释太赫兹波产生机制,模拟结果与观察到的实验结果一致,认为太赫兹波源于柱界面所形成的净电流。激光在水中自聚焦会产生等离子体,其具有在激光传播轴两侧形成正负电流的动量。如果激光轴偏离水柱中心,两股水流的对称性将被打破。随着偏差的增加,净电流和产生的太赫兹波将增强。

2019 年, Yiwen E 等^[87] 报道了通过预成型等离子体增强水产生太赫兹波的结果。图 26(a) 和图 26(b)

中的顶部和中间曲线是预泵浦或主泵浦脉冲产生的太赫兹信号。实验结果表明,主泵浦产生的太赫兹信号随着预泵浦等离子体的存在而增加。P 偏振和 S 偏振预泵浦都有助于增强太赫兹波。与传统的单泵浦激励相比,在相同的总入射能量下,当预泵浦为 S 偏振时,他们的方法有超过 8 倍的太赫兹增强。这一观察结果为促进液体中太赫兹波产生提供了新策略,有助于进一步理解激光和液体之间的相互作用。

4.2 其他液体辐射太赫兹波

2020 年, Yiwen E 等^[88] 报道了液氮 (LN_2) 可以辐射太赫兹波的结论。图 27(a) 为产生液氮的设备图,其可以在周围环境中形成一条稳定的液体线。图 27(b) 是表面光滑且流动稳定的液氮线照片。图 27(c)

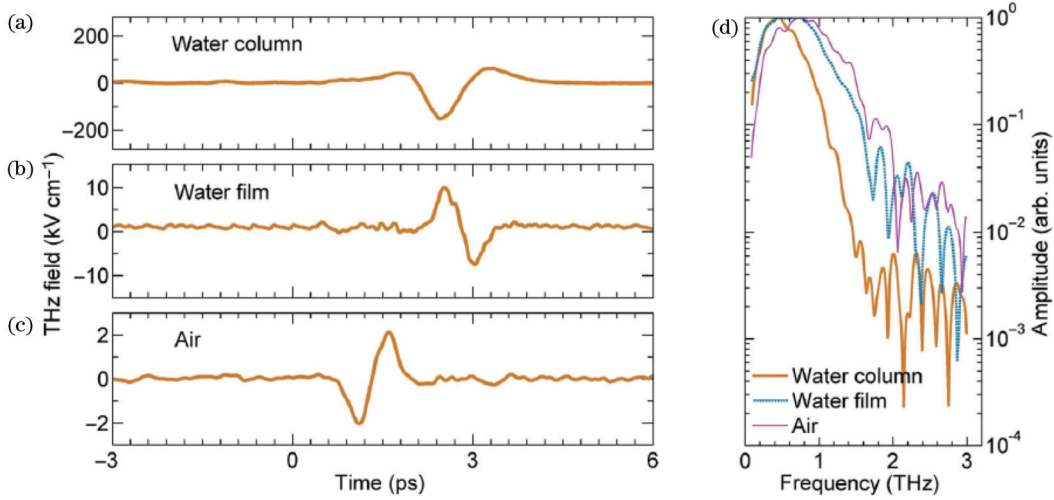


图 24 多种介质产生太赫兹波^[85]。(a)~(c)水柱、水膜和空气产生的太赫兹脉冲;(d)相应的光谱
Fig. 24 Terahertz wave generated by various media^[85]. (a)~(c) Terahertz pulse generated by water column, water film, air;
(d) corresponding spectra

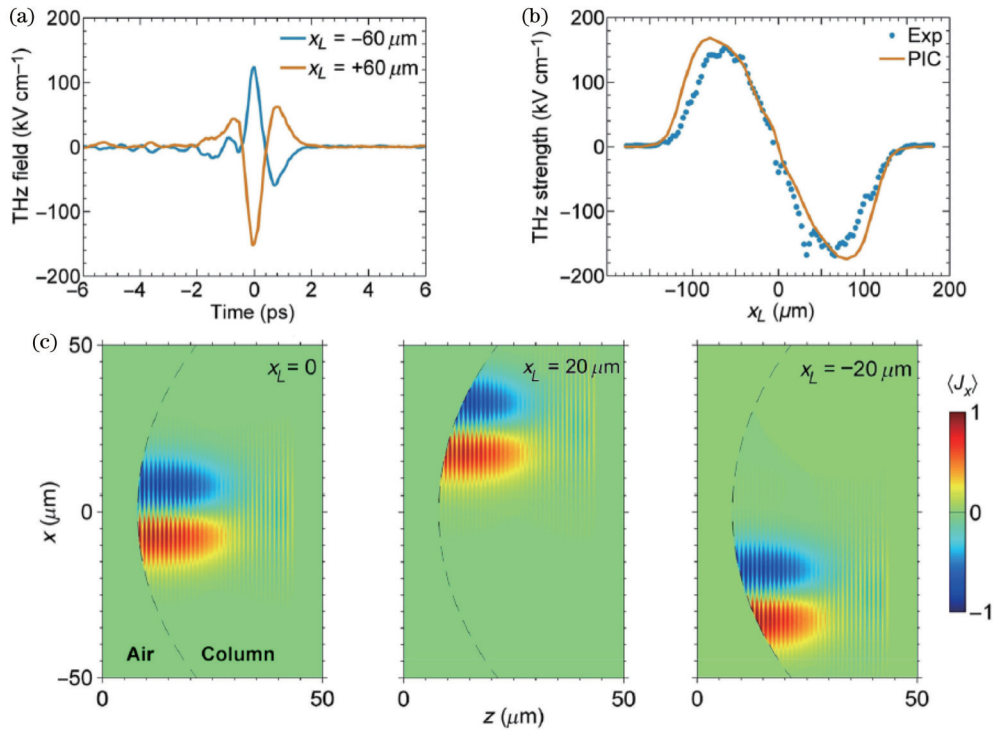


图 25 太赫兹波辐射的理论模拟^[85]。(a)在 $x_L = \pm 60 \mu\text{m}$ 时的太赫兹脉冲;(b)太赫兹强度随 x_L 的变化;(c)准静态电流的PIC结果
Fig. 25 Theoretical simulation of terahertz wave radiation^[85]. (a) Terahertz pulse at $x_L = \pm 60 \mu\text{m}$; (b) terahertz intensity is a function of x_L ; (c) PIC results of quasi-static current

显示了在相同实验条件下从液氮线和水线发出的太赫兹波形,测量得到液氮的太赫兹峰值场是水的 0.4。相应的光谱如插图所示,液氮显示出更宽的带宽和更高的高频分量,他们认为这可能是液氮是一种非极性液体,它在太赫兹区域内的吸收率较低导致的。此外,汽化的氮气不断净化系统,以保持高频的太赫兹成分。

金属被认为是高效的太赫兹辐射源,因为它们有相对较低的电离阈值,这允许使用较低的泵浦能量产

生太赫兹波。2020年,Cao等^[89]报道了液态金属可以辐射太赫兹波的研究。他们使用液态镓作为太赫兹源,检测到前向传播的太赫兹信号,如图 28(a)所示,所产生的太赫兹信号比水强 1.7 倍。图 28(b)展示了对应的频谱,可以看到液态镓产生的太赫兹信号比水产生的带宽更宽,他们认为这现象是电离发生在液体镓的表面导致的。由于较长的脉冲持续时间更有利于液体产生太赫兹波,因此足够的电子通过光脉冲前部的多光子电离或隧穿电离得到电离。然后,随着级联

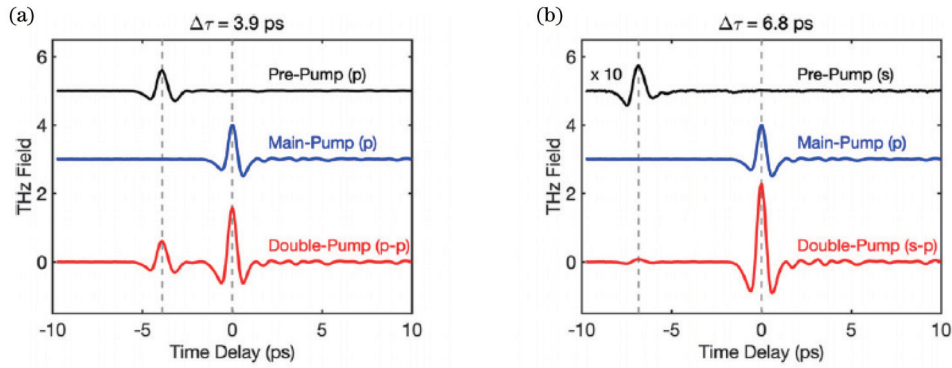


图 26 预等离子体增强太赫兹波辐射^[87]。(a)由 P 偏振预泵浦和主泵浦单独产生的太赫兹信号,及具有一定时间延迟的两个光束产生的太赫兹信号;(b)当预泵浦是 S 偏振时,绘制了类似的结果

Fig. 26 THz wave generation enhanced by a preformed plasma^[87]. (a) THz signals individually generated by the P-polarized pre-pump and main-pump, and the THz signal generated by two beams with a certain time delay; (b) similar results are plotted when the pre-pump is S-polarized

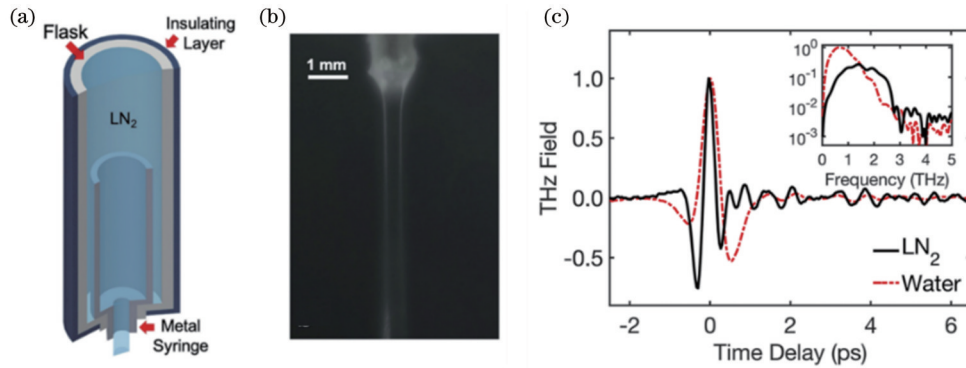


图 27 液氮(LN₂)辐射太赫兹波^[88]。(a)用于引导液氮管线的设备;(b)流动的液氮照片;(c)从水线(210 μm)和液氮线(400 μm)检测到的太赫兹波形

Fig. 27 Terahertz generation from liquid nitrogen (LN₂)^[88]. (a) Diagram of the apparatus for guiding a liquid nitrogen line; (b) photo of a flowing liquid nitrogen line; (c) detected THz waveforms from a water line (210 μm) and a liquid nitrogen line (400 μm)

电离发生,其中电子的碰撞导致电子数量的指数增长。由于等离子体的密度梯度分布不均匀,电子被有质势加速。最终,太赫兹波从液态金属中辐射出来。

本节主要展示了激光激发液体产生太赫兹波的研究。2017年,水中等离子体首次被报道可以作为太赫

兹辐射源,打破了液态介质难以成为优秀太赫兹源选材的固有认知,为光子学太赫兹源带来了新的契机。尽管目前明晰液体等离子体中太赫兹辐射的物理机制还存在挑战,但气体光子学三十年的探索为等离子体太赫兹源的发展积累了丰富的经验,液体光子学这一

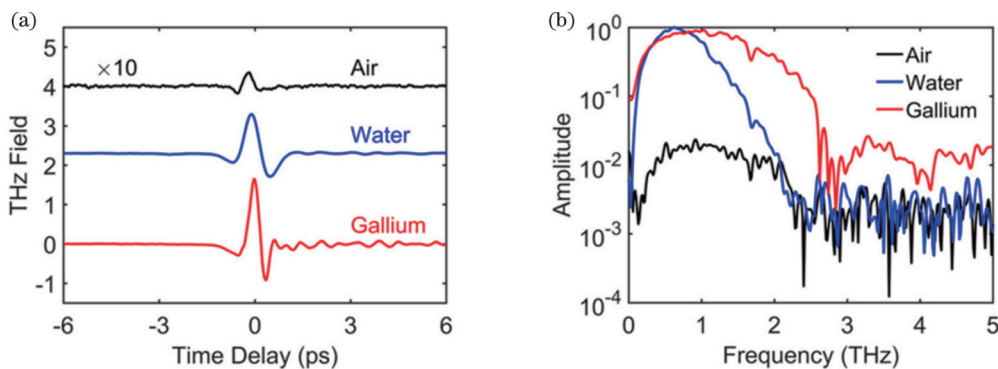


图 28 单色场激发空气和 210 μm 直径的水线和镓线辐射太赫兹波^[89]。(a)空气等离子体、水和液态镓中太赫兹场强的比较;(b)相应的频谱比较

Fig. 28 THz waves generated from air and a 210 μm-diameter line of water and gallium with a single-color excitation^[89]. (a) Comparison of THz field strengths in air plasma, water, and liquid gallium; (b) corresponding comparison in spectra

新资源必将在较短的时间内得到迅速的开发。本课题组认为,液体等离子体在太赫兹领域的进一步发展将主要有 2 个方面:一方面通过改变液体参数(如种类、几何尺寸、各种分散系、超流体等)控制太赫兹辐射性能,所有的努力都将为开发强液体太赫兹源铺平道路;另一方面是探索光-液体等离子体-太赫兹波的相互作用。光激发液体等离子体得到的太赫兹波辐射受到复杂的分子强相互作用力、分子间弱相互作用力、电子状态的影响,同时这一可观测的宏观现象也必将包含丰富的物质信息^[90-95]。探索其中的物理机制,指导研发新型太赫兹技术也将会是一个有趣的探索方向。

5 结论与展望

综述了基于激光产生强场太赫兹波的多种方案及其特点。总的来说,超快的飞秒激光激发物质将为强太赫兹源提供一条新的途径。特别是本文着重介绍的基于金属薄膜、空气、水膜的太赫兹源,和传统的晶体光学整流和光电导天线方案相比,超宽的频谱覆盖范围和无线频率盲点是这些方案不可替代的优势。例如激光诱导空气等离子体和金属薄膜产生的太赫兹辐射均可以实现 0~50 THz 以上的带宽。然而这些方案产生的太赫兹波辐射的强度和信噪比与光整流方案相比还有一定差距。

在金属薄膜中,其太赫兹波辐射效率受到有效作用距离和固体靶材刷新时间的限制。同时,学者通过对其理论机制进行探索后认为,灵活控制辐射太赫兹波的频率、角分布、偏振特性是可行的。因此认为配合微纳加工手段对金属薄膜进行结构化设计、对多谐振模态进行耦合将会为进一步提高太赫兹辐射强度以及对太赫兹波辐射性质的灵活控制提供新的方向,并进一步推动金属薄膜太赫兹源器件化、系统化的发展进程。

在气体等离子体中,其辐射太赫兹波的过程从根本上克服了固体介质有效作用距离和刷新时间的限制。众所周知,空气中激光诱导等离子体辐射太赫兹波的双色场方案在实验室中非常流行,可以高效产生太赫兹波,并已经在太赫兹成像、太赫兹时域光谱分析等领域内得到了广泛的应用。然而气体中相对低的等离子体密度也限制了太赫兹波的辐射强度。此外,气体等离子体中太赫兹辐射的能量密度具有中空分布的特征,不可避免地会影响其在应用领域的便捷性。调控激励激光脉冲的空间相位、探索太赫兹辐射的波前整形可以为打破上述气体等离子体辐射太赫兹波的限制提供新的途径。

在液体等离子体中,其等离子体密度远高于气体,并接近于固体。在相同泵浦光功率条件下,其辐射太赫兹波的强度远高于气体等离子体,同时对于液体的流动性,也无需考虑靶材刷新时间的限制。然而实验结果表明,太赫兹场并没有随着等离子体密度的显著

增加而出现预期 3 个量级的增强,这可能是液体对太赫兹波的吸收导致的。因此,在液体方案中,增加诱导的液体等离子体的长度或体积以及减少太赫兹波的吸收对增强太赫兹波是重要的。在理论机制方面,目前基于液体等离子体的大多数模型都是基于气体中的等离子体演化而来的,但液体和气体的动力学差异较大。靶材的几何形状、泵浦激光的波长、外部电场、不同液体靶材都会密切影响液体等离子体的辐射性能。与气体、固体产生的太赫兹波相比,液体产生太赫兹波是新兴领域,相关工作较少,而模型的合理性可能取决于进一步的研究结果。完善液体等离子体太赫兹波辐射模型,探索更高性能的液体太赫兹源都迫切需要更多的实验尝试与探究。

激光诱导等离子体产生太赫兹波的研究必将在太赫兹技术日益发展的实际应用需求中发挥越来越大的作用。强太赫兹场激发下观测材料的结构响应、基于强太赫兹场探究材料在亚皮秒尺度上动力学演化过程、基于等离子体太赫兹源的超宽带光谱测量等越来越多的应用在强太赫兹场的发展中不断被创造创新。完善对光驱动下物质辐射太赫兹波机制的理解,寻找更加优秀的太赫兹源将是包括本团队在内国内外科研工作长期奋斗的目标。

参 考 文 献

- [1] Mittleman D M. Perspective: Terahertz science and technology [J]. *Journal of Applied Physics*, 2017, 122(23): 230901.
- [2] Nagatsuma T, Ducournau G, Renaud C C. Advances in terahertz communications accelerated by photonics[J]. *Nature Photonics*, 2016, 10(6): 371-379.
- [3] Zhang X C, Shkurinov A, Zhang Y. Extreme terahertz science [J]. *Nature Photonics*, 2017, 11(1): 16-18.
- [4] 谷智, 陈沉, 李焕勇, 等. 太赫兹辐射源的研究进展[J]. *红外技术*, 2011, 33(5): 252-256, 261.
Gu Z, Chen Y, Li H Y, et al. Research progress of terahertz radiation sources[J]. *Infrared Technology*, 2011, 33(5): 252-256, 261.
- [5] 叶全意, 杨春. 光子学太赫兹源研究进展[J]. *中国光学*, 2012, 5(1): 1-11.
Ye Q Y, Yang C. Recent progress in THz sources based on photonics methods[J]. *Chinese Optics*, 2012, 5(1): 1-11.
- [6] Tonouchi M. Cutting-edge terahertz technology[J]. *Nature Photonics*, 2007, 1(2): 97-105.
- [7] Mittleman D M, Jacobsen R H, Nuss M C. T-ray imaging[J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 1996, 2(3): 679-692.
- [8] Mittleman D M, Hunsche S, Boivin L, et al. T-ray tomography [J]. *Optics Letters*, 1997, 22(12): 904.
- [9] Mittleman D M, Jacobsen R H, Neelamani R, et al. Gas sensing using terahertz time-domain spectroscopy[J]. *Applied Physics B*, 1998, 67(3): 379-390.
- [10] Scalari G, Walther C, Faist J, et al. Electrically switchable, two-color quantum cascade laser emitting at 1.39 and 2.3 THz [J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 88(14): 141102.
- [11] Ito H, Nakajima F, Furuta T, et al. Continuous THz-wave generation using antenna-integrated uni-travelling-carrier photodiodes[J]. *Semiconductor Science and Technology*, 2005, 20(7): S191-S198.
- [12] Dem'yanenko M A, Esaev D G, Knyazev B A, et al. Imaging

- with a 90 frames/s microbolometer focal plane array and high-power terahertz free electron laser[J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 92(13): 131116.
- [13] Zvyagin S A, Ozerov M, Čížmár E, et al. Terahertz-range free-electron laser electron spin resonance spectroscopy: techniques and applications in high magnetic fields[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2009, 80(7): 073102.
- [14] Sung C, Tochitsky S Y, Reiche S, et al. Seeded free-electron and inverse free-electron laser techniques for radiation amplification and electron microbunching in the terahertz range[J]. *Physical Review Special Topics - Accelerators and Beams*, 2006, 9(12): 120703.
- [15] Bratman V L, Kalynov Y K, Manuilov V N. Large-Orbit Gyrotron operation in the terahertz frequency range[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 102(24): 245101.
- [16] Sabchevski S P, Idehara T. Design of a compact sub-terahertz gyrotron for spectroscopic applications[J]. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 2010, 31(8): 934-948.
- [17] Nusinovich G S, Sprangle P, Semenov V E, et al. On the sensitivity of terahertz gyrotron based systems for remote detection of concealed radioactive materials[J]. *Journal of Applied Physics*, 2012, 111(12): 124912.
- [18] Lee Y S. Principles of terahertz science and technology[M]. Boston: Springer, 2009.
- [19] Auston D H. Picosecond optoelectronic switching and gating in silicon[J]. *Applied Physics Letters*, 1975, 26(3): 101-103.
- [20] Hoffmann M C, Yeh K L, Hebling J, et al. Efficient terahertz generation by optical rectification at 1035 nm[J]. *Optics Express*, 2007, 15(18): 11706-11713.
- [21] Blanchard F, Razzari L, Bandulet H-C, et al. Generation of 1.5 μ J single-cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal[J]. *Optics Express*, 2007, 15(20): 13212-13220.
- [22] Hu B B, Nuss M C. Imaging with terahertz waves[J]. *Optics Letters*, 1995, 20(16): 1716-1718.
- [23] 李允植, 崔万照. 太赫兹科学与技术原理[M]. 北京: 国防工业出版社, 2012.
Lee Y S, Cui W Z. Principles of terahertz science and technology [M]. Beijing: National Defense Industry Press, 2012.
- [24] Welsh G H, Hunt N T, Wynne K. Terahertz-pulse emission through laser excitation of surface plasmons in a metal grating[J]. *Physical Review Letters*, 2007, 98(2): 026803.
- [25] Welsh G H, Wynne K. Generation of ultrafast terahertz radiation pulses on metallic nanostructured surfaces[J]. *Optics Express*, 2009, 17(4): 2470-2480.
- [26] Polyushkin D K, Hendry E, Stone E K, et al. THz generation from plasmonic nanoparticle arrays[J]. *Nano Letters*, 2011, 11(11): 4718-4724.
- [27] Dai J M, Zhang X C. Terahertz wave generation from thin metal films excited by asymmetrical optical fields[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(4): 777-780.
- [28] Takano K, Asai M, Kato K, et al. Terahertz emission from gold nanorods irradiated by ultrashort laser pulses of different wavelengths[J]. *Scientific Reports*, 2019, 9: 3280.
- [29] Hamster H, Sullivan A, Gordon S, et al. Subpicosecond, electromagnetic pulses from intense laser-plasma interaction[J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(17): 2725-2728.
- [30] Hamster H, Sullivan A, Gordon S, et al. Short-pulse terahertz radiation from high-intensity-laser-produced plasmas[J]. *Physical Review E*, 1994, 49(1): 671-677.
- [31] Cook D J, Hochstrasser R M. Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air[J]. *Optics Letters*, 2000, 25(16): 1210-1212.
- [32] 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.
- [33] Löffler T, Kress M, Thomson M, et al. Efficient terahertz pulse generation in laser-induced gas plasmas[J]. *Acta Physica Polonica A*, 2005, 107(1): 99-108.
- [34] 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.
- [35] Bartel T, Gaal P, Reimann K, et al. Generation of single-cycle THz transients with high electric-field amplitudes[J]. *Optics Letters*, 2005, 30(20): 2805-2807.
- [36] 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.
- [37] Jin Q, E Y W, Williams K, et al. Observation of broadband terahertz wave generation from liquid water[J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 111(7): 071103.
- [38] Dey I, Jana K, Fedorov V Y, et al. Highly efficient broadband terahertz generation from ultrashort laser filamentation in liquids [J]. *Nature Communications*, 2017, 8: 1184.
- [39] Horiuchi N. Terahertz surprises[J]. *Nature Photonics*, 2018, 12(3): 128-130.
- [40] Zhang L L, Mu K J, Zhou Y S, et al. High-power THz to IR emission by femtosecond laser irradiation of random 2D metallic nanostructures[J]. *Scientific Reports*, 2015, 5: 12536.
- [41] Zhang L L, Buccheri F, Zhang C L, et al. Terahertz emission from thin metal films with porous nanostructures[J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 107(7): 071107.
- [42] Zhang L L, Wu T, Zhao J, et al. Bi-directional terahertz-to-infrared emission from metal-coated nanostructures upon femtosecond laser irradiation[J]. *Optics Express*, 2015, 23(19): 25202-25208.
- [43] Zhang L L, Mu K J, Zhao J, et al. Intense thermal terahertz-to-infrared emission from random metallic nanostructures under femtosecond laser irradiation[J]. *Optics Express*, 2015, 23(11): 14211-14218.
- [44] Zhang L L, Zhao J, Wu T, et al. Terahertz-to-infrared emission through laser excitation of surface plasmons in metal films with porous nanostructures[J]. *Optics Express*, 2015, 23(13): 17185-17190.
- [45] Zhang L L, Wu T, Zhao H, et al. Enhanced THz-to-IR emission from gas-surrounded metallic nanostructures by femtosecond laser irradiation[J]. *Optics Communications*, 2016, 381: 414-417.
- [46] Freitag M, Chiu H Y, Steiner M, et al. Thermal infrared emission from biased graphene[J]. *Nature Nanotechnology*, 2010, 5(7): 497-501.
- [47] Raether H. Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings[M]. Berlin: Springer-Verlag, 1988.
- [48] Irvine S E, Elezzabi A Y. Ponderomotive electron acceleration using surface plasmon waves excited with femtosecond laser pulses[J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 86(26): 264102.
- [49] Kreibig U, Vollmer M. Optical properties of metal clusters[M]. Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 1995.
- [50] Vorobyev A Y, Guo C L. Direct observation of enhanced residual thermal energy coupling to solids in femtosecond laser ablation[J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 86(1): 011916.
- [51] Vorobyev A Y, Guo C L. Thermal response and optical absorbance of metals under femtosecond laser irradiation[J]. *Natural Science*, 2011, 3(6): 488-495.
- [52] Vorobyev A Y, Guo C L. Enhanced energy coupling in femtosecond laser-metal interactions at high intensities[J]. *Optics Express*, 2006, 14(26): 13113-13119.
- [53] Zhong H A, Karpowicz N, Zhang X C. Terahertz emission profile from laser-induced air plasma[J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 88(26): 261103.
- [54] Petersen P B, Tokmakoff A. Source for ultrafast continuum infrared and terahertz radiation[J]. *Optics Letters*, 2010, 35(12): 1962-1964.

- [55] Chen Y Q, Yamaguchi M, Wang M F, et al. Terahertz pulse generation from noble gases[J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 91(25): 251116.
- [56] Rodriguez G, Dakovski G L. Scaling behavior of ultrafast two-color terahertz generation in plasma gas targets: energy and pressure dependence[J]. *Optics Express*, 2010, 18(14): 15130-15143.
- [57] Sun X A, Zhang X C. Terahertz radiation in alkali vapor plasmas [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(19): 191106.
- [58] Löffler T, Jacob F, Roskos H G. Generation of terahertz pulses by photoionization of electrically biased air[J]. *Applied Physics Letters*, 2000, 77(3): 453-455.
- [59] 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.
- [60] Sun W F, Zhou Y S, Wang X K, et al. External electric field control of THz pulse generation in ambient air[J]. *Optics Express*, 2008, 16(21): 16573-16580.
- [61] Chen Y P, Wang T J, Marceau C, et al. Characterization of terahertz emission from a dc-biased filament in air[J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 95(10): 101101.
- [62] Wang T J, Marceau C, Chen Y P, et al. Terahertz emission from a dc-biased two-color femtosecond laser-induced filament in air[J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 96(21): 211113.
- [63] Liu K, Koulouklidis A D, Papazoglou D G, et al. Enhanced terahertz wave emission from air-plasma tailored by abruptly autofocusing laser beams[J]. *Optica*, 2016, 3(6): 605-608.
- [64] Xie X, Xu J Z, Dai J M, et al. Enhancement of terahertz wave generation from laser induced plasma[J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 90(14): 141104.
- [65] Wen H D, Darancioglu D, Lindenberg A M. High-speed all-optical terahertz polarization switching by a transient plasma phase modulator[J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 96(16): 161103.
- [66] Du H W, Hoshina H, Otani C, et al. Terahertz waves radiated from two noncollinear femtosecond plasma filaments[J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 107(21): 211113.
- [67] 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.
- [68] Zhang L L, Zhang S J, Zhang R, et al. Excitation-wavelength dependent terahertz wave polarization control in laser-induced filament[J]. *Optics Express*, 2017, 25(26): 32346-32354.
- [69] Zhang S J, Zhang L L, Zhao H, et al. Excitation-wavelength scaling of terahertz radiation in alkali vapor plasmas[J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 111(11): 111104.
- [70] Zhao H, Zhang L L, Huang S X, et al. Terahertz wave generation from noble gas plasmas induced by a wavelength-tunable femtosecond laser[J]. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 2018, 8(3): 299-304.
- [71] He B Q, Nan J Y, Li M, et al. Terahertz modulation induced by filament interaction[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(5): 967-970.
- [72] 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.
- [73] 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.
- [74] Wu T, Dong L Q, Zhang S J, et al. Modulation of terahertz wave generation from laser-induced filament based on a preionized plasma[J]. *Optics Communications*, 2019, 444: 137-141.
- [75] Wu T, Dong L Q, Zhang R, et al. Terahertz wave modulation by pre-plasma using different laser wavelength[J]. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 2019, 40(9): 962-970.
- [76] Zhang L L, Wang W M, Wu T, et al. Observation of terahertz radiation via the two-color laser scheme with uncommon frequency ratios[J]. *Physical Review Letters*, 2017, 119(23): 235001.
- [77] de Alaiza Martinez 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.
- [78] 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.
- [79] Liu S, Fan Z, Lu C, 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.
- [80] Ma D N, Dong L Q, Zhang M H, et al. Enhancement of terahertz waves from two-color laser-field induced air plasma excited using a third-color femtosecond laser[J]. *Optics Express*, 2020, 28(14): 20598-20608.
- [81] Kolesik M, Moloney J V, Mlejnek M. Unidirectional optical pulse propagation equation[J]. *Physical Review Letters*, 2002, 89(28): 283902.
- [82] Kolesik M, Moloney J V. Nonlinear optical pulse propagation simulation: from Maxwell's to unidirectional equations[J]. *Physical Review E*, 2004, 70(3): 036604.
- [83] Balakin A V, Coutaz J L, Makarov V A, et al. Terahertz wave generation from liquid nitrogen[J]. *Photonics Research*, 2019, 7(6): 678-686.
- [84] 吴同. 空气和液体产生太赫兹波的特性研究[D]. 北京: 北京理工大学, 2020: 73-80.
- Wu T. Characteristics of terahertz wave generated from air and liquid[D]. Beijing: Beijing Institute of Technology, 2020: 73-80.
- [85] Zhang L L, Wang W M, Wu T, et al. Strong terahertz radiation from a liquid-water line[J]. *Physical Review Applied*, 2019, 12(1): 014005.
- [86] Feng S J, Dong L Q, Wu T, et al. Terahertz wave emission from water lines[J]. *Chinese Optics Letters*, 2020, 18(2): 023202.
- [87] E Y W, Jin Q, Zhang X C. Enhancement of terahertz emission by a preformed plasma in liquid water[J]. *Applied Physics Letters*, 2019, 115(10): 101101.
- [88] E Y W, Cao Y Q, Ling F, et al. Flowing cryogenic liquid target for terahertz wave generation[J]. *AIP Advances*, 2020, 10(10): 105119.
- [89] Cao Y Q, E Y W, Huang P J, et al. Broadband terahertz wave emission from liquid metal[J]. *Applied Physics Letters*, 2020, 117(4): 041107.
- [90] Tan Y, Zhao H, Wang W M, et al. Water-based coherent detection of broadband terahertz pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2022, 128(9): 093902.
- [91] Zhao H, Tan Y, Zhang L L, et al. Ultrafast hydrogen bond dynamics of liquid water revealed by terahertz-induced transient birefringence[J]. *Light: Science & Applications*, 2020, 9: 136.
- [92] Tan Y, Zhao H, Zhang R, et al. Transient evolution of Quasifree electrons of plasma in liquid water revealed by optical-pump terahertz-probe spectroscopy[J]. *Advanced Photonics*, 2021, 3(1): 015002.
- [93] Elgabarty H, Kampfrath T, Bonthuis D J, et al. Energy transfer within the hydrogen bonding network of water following resonant terahertz excitation[J]. *Science Advances*, 2020, 6(17): eaay7074.
- [94] Balos V, Kaliannan N K, Elgabarty H, et al. Time-resolved terahertz - Raman spectroscopy reveals that cations and anions distinctly modify intermolecular interactions of water[J]. *Nature Chemistry*, 2022, 14(9): 1031-1037.
- [95] Balos V, Bierhance G, Wolf M, et al. Terahertz-magnetic-field induced ultrafast faraday rotation of molecular liquids[J]. *Physical Review Letters*, 2020, 124(9): 093201.

Research Progress on Intense, Broadband, Terahertz Wave Radiation

Zhao Hang^{1,3}, Zhao Yuejin^{1,3*}, Zhang Liangliang², Zhang Cunlin²

¹*School of Optics and Photonics, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China;*

²*Department of Physics, Capital Normal University, Beijing 100048, China;*

³*Yangtze Delta Region Academy of Beijing Institute of Technology, Jiaxing 314019, Zhejiang, China*

Abstract

Significance The terahertz (THz) range (0.1–10 THz) lies between the microwave and infrared region in the electromagnetic spectrum and is characterized by low photon energy and strong penetration. The THz range covers the spectra attributed to the intermolecular vibrations and rotational energy levels of various organic and biological macromolecules. Terahertz technology realizes the integration of electronics and photonics, offering tremendous development potential in fields such as military applications, biomedical applications, and future communications. However, before mid-1980s, research on the nature of terahertz radiation could not be conducted owing to the absence of effective generation and detection methods with respect to electromagnetic radiation in the terahertz frequency range.

The subsequent rapid advancement in ultrafast laser pulse technology offered a stable and effective excitation source for generating terahertz pulses. However, owing to the low output power of existing terahertz-radiation sources and the high thermal-radiation background in the terahertz frequency range, new sources need to be developed to meet high requirements in terms of energy, bandwidth, and other performance characteristics.

Terahertz radiation can be generated through several methods, including optical methods, terahertz quantum cascade lasers, and solid electronic devices. This study primarily focuses on optical devices used for generating terahertz radiation. The femtosecond laser pulse, characterized by low repetition rates and high energy, can serve as the pump source, triggering strong nonlinear effects in various targets, thus generating strong terahertz radiation. This radiation affords manipulation and control over complex condensed-matter systems. Moreover, this method of generating terahertz radiation has been studied extensively, and the material state covers solid, gas, and liquid.

However, sources that can emit terahertz radiation having high energy and a broad frequency spectrum are still lacking. If a broadband strong terahertz source with stable output can be realized, it can greatly promote the development and practical process of terahertz technology in various fields. This study summarizes recent research progresses in generating intense broadband terahertz radiation using various materials excited via ultrafast femtosecond lasers, including studies on laser-induced terahertz radiation from nanometal films, gas plasma, and liquid plasma. The inherent physical mechanisms of each method are analyzed and discussed herein, affording numerous important exploration directions for research on terahertz-radiation sources.

Progress Photoconductive antennas and nonlinear electro-optic crystals, which are routinely used as terahertz-radiation sources in laboratories, generate stable terahertz radiation when excited via ultrashort laser pulses. Terahertz radiation can be employed in research applications such as terahertz time-domain spectral imaging. Although the signal-to-noise ratio of terahertz radiation is considerably higher than that of the radiation in the traditional far-infrared Fourier spectrum, the detection and observed spectrum range of terahertz radiation is constrained, only covering a range of 0–3 THz. Recently, researchers have focused on generating terahertz waves from metal films. In 2007, Gregor *et al.* reported in *Physical Review Letters* that terahertz waves ranging from 0.2 to 2.5 THz could be generated using metal gratings with nanostructures. They postulated that these terahertz waves were generated owing to incoherent optical rectification, which was caused by the acceleration of photoelectrons by surface plasma evanescent waves. In 2011, Polyushkin *et al.* reported in *Nano Letters* the use of silver nanoparticle arrays to generate a terahertz pulse with a bandwidth of 0–1.5 THz. They suggested that terahertz waves were generated when photoelectrons were accelerated by the driving force created by the inhomogeneous plasma electric field. In 2014, Dai *et al.* reported in *Optics Letters* the generation of a terahertz wave with a bandwidth of 0–2.5 THz by exciting a gold film deposited on a titanium sapphire substrate using a two-color laser field. They attributed this generation process to the third-order nonlinear effect of metal, namely the four-wave mixing mechanism. We reported that femtosecond laser pulses can excite thin metal films to emit high-energy, broadband terahertz waves and studied the physical mechanism of this emission process from various aspects such as energy, material, frequency, and gas environment (Figs. 1–7).

In contrast to the abovementioned solid-medium generation methods, generating terahertz radiation using the femtosecond laser-excited air plasma provides several advantages, including ultrawideband, high intensity, remote

detection feasibility, and no laser damage threshold. Using different pump lasers to excite plasma presents a novel research approach. Clerici *et al.* proposed a model in *Physical Review Letters* that could effectively predict the wavelength dependence of terahertz emission through experimental research. They demonstrated that the plasma current increases proportionally with the square of the pump wavelength, and the terahertz emission at 1800 nm is 30 times higher than that at 800 nm owing to the wavelength combination effect. We explored the characteristics of terahertz waves radiated from plasma excited using long-wavelength lasers (Figs. 8–12) and observed that the radiation ability of the terahertz waves is enhanced by pre-modulating the plasma, changing the excitation medium, and altering the ratio of the two-color light frequency (Figs. 13–19).

Reports on liquids being used as terahertz-radiation sources are scarce. In 2017, in *Applied Physics Letters*, Jin *et al.* reported the possibility of a terahertz wave being generated using a liquid water film. Simultaneously, Dey *et al.* reported in *Nature Communications* that ultrashort laser filaments in liquids could generate terahertz wave radiation. They discovered that the terahertz energy radiated by a liquid excited by the monochromatic field is an order of magnitude higher than that of the terahertz wave obtained by the two-color field scheme in the air. In 2018, Yiwen E *et al.* reported in *Applied Physics Letters* the mechanism of terahertz radiation generated by a water film based on the simulation they performed using a dynamic dipole that demonstrated the dependence of terahertz intensity on incident laser angle. Moreover, we conducted research on terahertz waves generated by exciting a liquid water film. We explored the characteristics of a terahertz wave generated via the laser excitation of a water film and water line (Figs. 20–25), and further increased the radiation efficiency of the terahertz wave.

Conclusions and Prospects Herein, we report that materials such as metal films, air, and liquid water films excited using ultrafast femtosecond lasers provide a novel approach for obtaining powerful terahertz radiation. The development of robust terahertz sources allows the exploration of the nonlinear characteristics of materials in the terahertz range and provides the experimental basis for observing the dynamic evolution of materials on the picosecond scale. The increasing development of terahertz technology and the practical application demand also constantly put forward new expectations for terahertz sources. Improving the understanding related to the terahertz-radiation mechanism in materials excited by laser pulses and identifying excellent terahertz sources will remain a long-term objective for many researchers.

Key words ultrafast optics; terahertz radiation; metal film; gas plasma; liquid plasma