
无间隙宽光谱超短太赫兹脉冲新方案

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/22413.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

无间隙宽光谱超短太赫兹脉冲新方案。

近日，来自复旦大学表面物理国家重点实验室、微纳米光子结构重点实验室的Y. Ron Shen教授团队在国际顶尖学术期刊《Light: Science Applications》发表了题为A novel scheme for ultrashort terahertz pulse generation over a gapless wide spectral range: Raman-resonance-enhanced four-wave mixing的高水平论文，Y. Ron Shen教授团队提出了一种利用拉曼共振增强和四波混频产生无频率间隙、可调谐的太赫兹脉冲的新方案，可以在无间隙宽光谱范围内产生超短的太赫兹脉冲，为材料分析提供了新的可能。

超短高能量相干光脉冲可以用于观察非线性光学效应，并且有助于通过非线性光学光谱来表征、分析材料，另一方面，该技术可以广泛应用于材料低频激发超快动力学、材料结构的光学操纵等领域。在过去的研究中，研究者们已经实现了10 THz到X射线的整个光谱范围内的强飞秒脉冲以及低于5 THz的高强度皮秒脉冲，但在对材料研究非常重要的5~12 THz之间光谱范围，稳定、连续可调的高能飞秒脉冲仍然是一个很大的挑战。在The 2017 Terahertz Science and Technology Roadmap的综述文章中，5~15 THz光谱范围被标记为需要填补的当前太赫兹空白。

Scheme	Reference	Input parameters		Output characteristics			
		Wave-length (μm)	Pulse energy (μJ)	Peak freq. (THz)	Bandwidth (THz)	Pulse energy (μJ)	Conversion (%)
OR in LiNbO_3	Ref. 30	0.8	6.5×10^3	0.35	0.5	6.4	1
Gas plasma	Ref. 31	0.8	560	6	12	$\sim 0.06^a$	$\sim 0.1^a$
DFG in GaSe	Ref. 11	1.1 ~ 1.2	~ 300 ~ 300	30	10	1.7	~ 6
DFG in GaSe	Ref. 13	1.03 1.07	~ 3 4.7	13	6	1.5×10^{-3b}	0.5^b
R-FWM in diamond	This work	1.45 1.80 ~ 6	85 35 10	5 10 15		5×10^{-3} 1.5×10^{-2} 4.1×10^{-2}	0.5 1.5 4

表1 小型实验室中常用的太赫兹产生方案概述

目前，二阶非线性晶体中的光学整流(OR)或差频产生(DFG)是产生强太赫兹脉冲的常用技术。然而，由于声子吸收，晶体产生的太赫兹是有限的。例如，GaSe是用于THz产生的最佳非线性晶体，但它在10~20 THz之间具有多个吸收带，并且在低于10 THz时透射率会急剧下降。在8 THz附近的强色散将GaSe中生成的太赫兹脉冲的有效相干长度限制在 $\sim 200 \mu\text{m}$ (泵浦波长约为 $1 \mu\text{m}$)。另一种产生太赫兹脉冲的常用方案是有机非线性晶体，但其只有几个在5 THz以上的窄透明窗口，并且具有低的光学损伤阈值。此外，激光诱导的气体等离子体可以产生高能THz脉冲，其光谱在低THz时达到峰值，并且具有延伸至 $>50 \text{ THz}$ 的宽翼。它们非常适合作为宽光谱范围内线性太赫兹光谱的探针，但其复杂的空间模式使它们不太适合作为强共振激发的泵。因此，超短高能相干光脉冲的产生仍然是一个具有重大意义和挑战的研究热点。

超短高能太赫兹脉冲为光与物质相互作用的研究开辟了一个令人兴奋的新领域，但是对于小型实验室中的材料研究，需要具有接近 MV/cm 的峰值场强的可广泛调谐的飞秒太赫兹脉冲，这限制了材料研究的发展。在过去的研究中，研究者们提出了在晶体中通过四波混频和Seeded-Kerr光放大技术来产生THz的想法，但由于材料的三阶非线性磁化率很小，产生 $>10 \text{ nJ THz}$ 脉冲需要峰值强度高于几个 TW/cm^2 的输入脉冲，这高于大多数材料的光学损伤阈值，导致该技术在实践中遇到了困难。

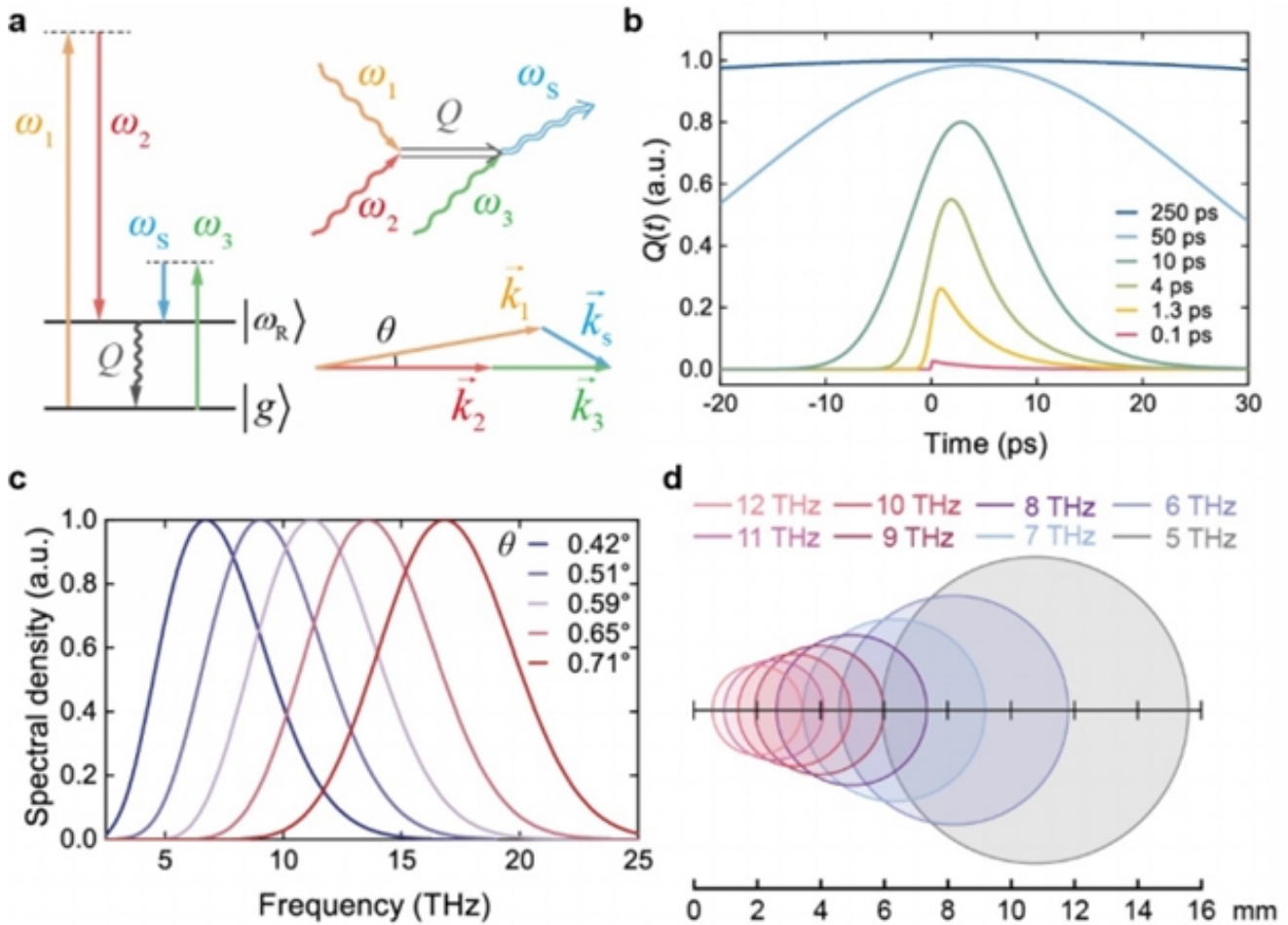


图1. 通过R-FWM在金刚石中产生THz的原理图。a、描述具有拉曼共振的四波混频的能级图、费曼图和波矢量图。b、不同脉宽的脉冲相干激发金刚石中1332 cm^{-1} 振动波的时间变化曲线。c、选定条件下计算的太赫兹输出光谱。d、THz输出光束中不同频率分量的空间分布，对应(c)中 $\theta = 0.42^\circ$ 的情况。

Y. Ron Shen教授团队基于通过四波混频(R-FWM)激发太赫兹脉冲的思想进行了进一步的研究，发现只有当光学损伤阈值足够高时，可以通过共振大幅增强材料的磁化率，最终通过四波混频产生高强度超短太赫兹脉冲。宽带隙材料具有两个拉曼共振，其中金刚石在0至5.5 eV(44000 cm^{-1})的整个光谱范围内没有本征吸收，在1600至4000 cm^{-1} 之间由于多声子跃迁存在一些较小的吸收，这种独特的吸收光谱使其非常适合进行四波混频。

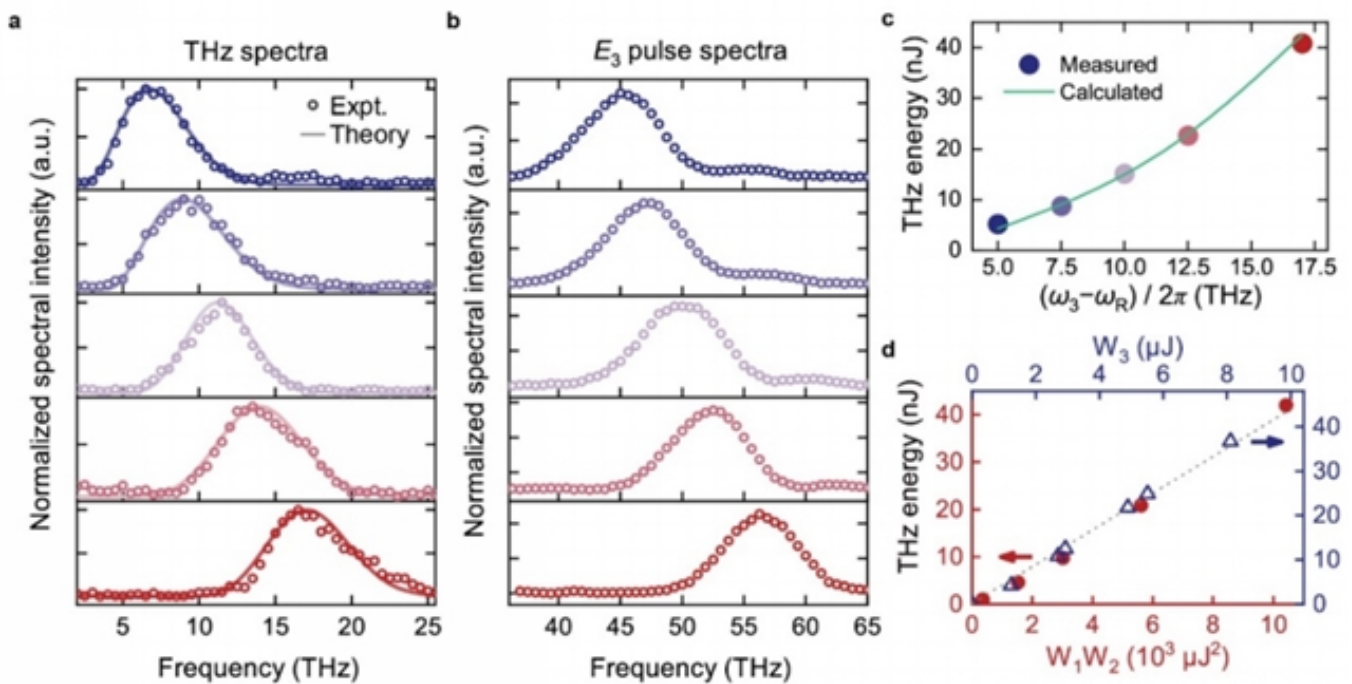


图2. 金刚石中通过R-FWM激发太赫兹脉冲的实验结果。a、THz输出光谱。实线是理论拟合。b、相对于(a)中的THz光谱测量的转换脉冲的一对一对应光谱。c、(a)中设置的五个光束几何结构的每个脉冲(圆)的输出THz能量。d、显示太赫兹脉冲能量与能量乘积的线性关系。

Z. Ron Shen教授团队提出了一种激励太赫兹脉冲的新方案，该方案在基于拉曼共振增强的中心对称介质(主要是金刚石)中通过四波混频产生无频率间隙、可调谐的太赫兹脉冲。研究人员在实验中，演示了高度稳定的、低周期、变换受限、具有接近高斯的空间和时间分布以及载波频率可从5~20

THz的太赫兹脉冲的生成。生成的太赫兹脉冲具有稳定且可控的载流子包络相位(CEP)，并且在10 THz处携带约15 nJ的能量(0.5毫米厚的金刚石)。实验测得的该太赫兹发生器的太赫兹脉冲特性与理论预测吻合良好，很好地覆盖了太赫兹光谱中现有的太赫兹间隙。

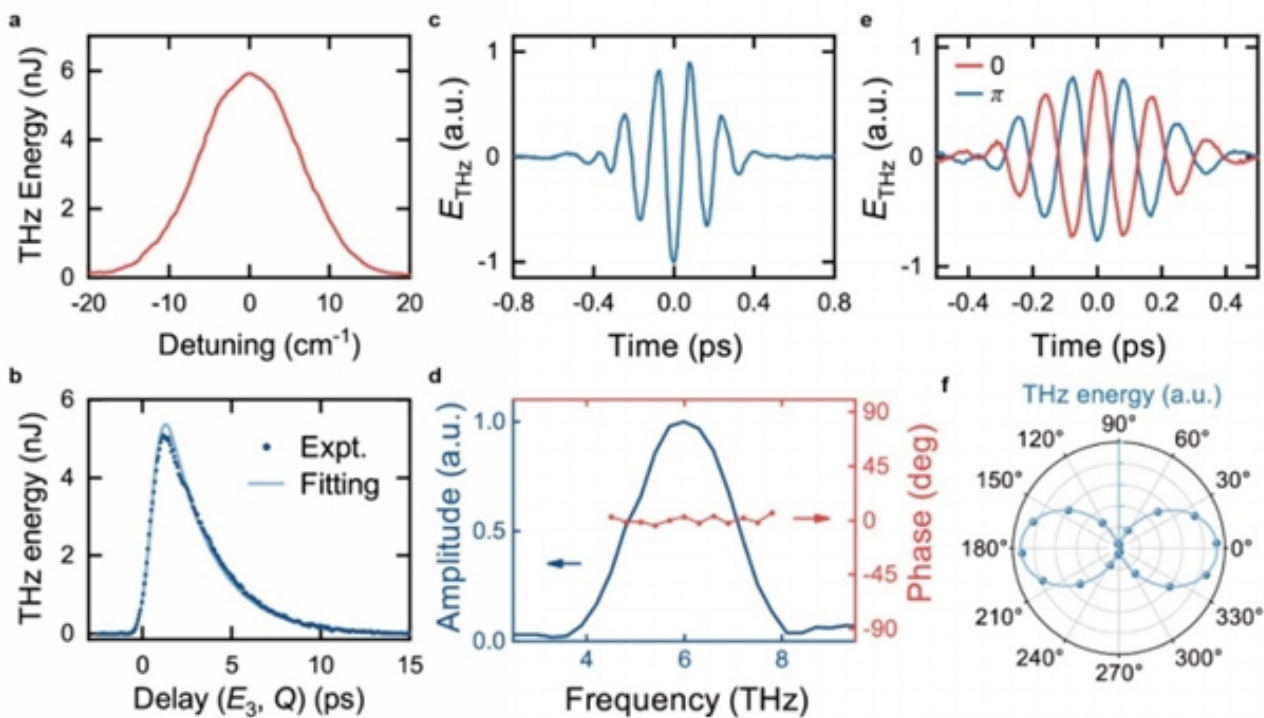


图3. R-FWM在金刚石中产生太赫兹的特性。a、THz输出能量与共振失谐。b、THz输出能量相对于振动激励的时间依赖性。c、通过GaP中的EOS测量的具有5 THz的太赫兹脉冲的时间曲线。d、对应(c)中THz脉冲傅里叶变换的振幅和相位谱。e、CEP为0的THz脉冲(红色曲线)和为 π 时的结果(蓝色曲线)。f、测量(散射)和拟合(实心曲线)17 THz输出的极化分布，表明THz脉冲是线性极化的。

相关结果以A novel scheme for ultrashort terahertz pulse generation over a gapless wide spectral range: Raman-resonance-enhanced four-wave mixing为题在《Light: Science Applications》上发表。(来源：LightScienceApplications微信公众号)

相关论文信息：<https://www.nature.com/articles/s41377-023-01071-z>

特别声明：本文转载仅仅是出于传播信息的需要，并不意味着代表本网站观点或证实其内容的真实性;如其他媒体、网站或个人从本网站转载使用，须保留本网站注明的“来源”，并自负版权等法律责任;作者如果不希望被转载或者联系转载稿费事宜，请与我们联系。

作者：Y. Ron She 来源：《光：科学与应用》

更多科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](http://iikx.com)转发