arXiv:2304.02703v1 [physics.optics] 5 Apr 2023

多脉冲等离子体产生太赫兹波的波长与相位考量 *

Clayton D. Moss（1）、Shayne A. Sorenson（2）、JeremyA.Johnson（1,*）
（1）杨百翰大学化学与生物化学系，美国犹他州普罗沃，84602（2）杨百翰大学爱达荷分校化学系，美国爱达荷州雷克斯堡，83460通讯作者：jjohnson@chem.byu.edu

摘要

我们提出了一项关于利用不同波长的多个光脉冲在一种易于在桌面环境中实现的光学方案中产生等离子体辐射太赫兹辐射的数值研究。为了实现相干太赫兹辐射，有必要仔细考虑多脉冲设置中涉及的所有波长。此前的理论工作探讨了理想波形和电场对称性，以实现从等离子体产生太赫兹辐射的最佳效率［《物理评论快报》**114** 183901（2015年）］。在实际应用中，这类设置相当精细且容易出现不稳定性。我们表明，理论效率较低的波长组合能够更容易地在桌面环境中，利用易于获得的近红外波长产生稳定的太赫兹脉冲。

1 引言

太赫兹（THz）辐射是一种有用的光谱工具，常用于研究超快电子和晶格动力学。[1] 一种为相位分辨光谱生成稳定太赫兹脉冲的方法是将双色光束聚焦在空气中以生成等离子体。 [2, 3, 4] 从等离子体生成的太赫兹脉冲的一个优势是其极宽的光谱带宽——这是等离子体生成过程高度非线性性质以及固体生成介质没有任何约束的结果。实验和计算努力已导致更优化的配置，考虑的参数包括：光束聚焦几何[5, 6], 基频泵浦波长[7, 8],以及使用超出标准双色设置的多种颜色的光[9, 10, 11]。值得注意的是，Martinez 等人 [9] 提出了一种由光的多个谐波制成的“锯齿”波形。虽然理想的锯齿形状在典型的台式实验中不可行，但已取得进展以在等离子体生成中纳入三次谐波 [10, 12]。

我们和其他研究者已经证明，在台式装置中，非共振三色方案只需增加极少设备，就能切实提高太赫兹输出。 [13, 14, 15, 16] 这种方案是在现有的双光束中加入一束 800 纳米光束，其中基频为红外（IR）。装置中通常会有多余的 800 纳米光，例如在下转换至红外光的过程中被弃用，或在反射光学元件中损失；即使少量 800 纳米光也可用于提高等离子体太赫兹输出。例如，我们展示了，当 1450 纳米基频与其二次谐波（725 纳米）结合时，加入额外的 800 纳米光，在某些能量通量组合下可使太赫兹输出提高至原来的 30 倍。 [14]

在本研究中，我们考察了此类实验，如图1a所示。简而言之，800纳米激光器被下转换至1200–1800纳米范围，这对于双色等离子体生成更为高效。 [7, 8] 所得红外光束被用作基频波长，并通过二次谐波产生（SHG）晶体聚焦，以形成双色等离子体。通常，下转换后大部分初始800纳米光强仍然存在，并作为“废弃”光被舍弃，光学参量放大器（OPA）中就是如此。被舍弃的废弃光会与红外基频光重新合束。在某些能量通量和延迟组合下，加入800纳米光束会增强太赫兹输出。这些实验的一个有趣结果是，固有的载波包络相位（CEP）不稳定性并不会影响所生成太赫兹脉冲的相干性。 [14, 16]一种可能的解释是，使用非公度波长所导致的频率拍频使这种稳定性成为可能。

*引用: **Moss,** **C. D.,Sorenson, S.A., Johnson, J.A. 数字对象标识符:000000/** **11111.**

我们基于横向光电流模型，进一步探讨了通过增加额外光束增强太赫兹输出的实验结果，以探索更多可能的生成方案。特别是，我们研究了基频红外波长的选择如何影响太赫兹输出和稳定性。我们发现，当基频波长接近 800 纳米的两倍时，三个脉冲的相对相位稳定性至关重要。如果三个光束之间的载波包络相位稳定，便可实现太赫兹效率在理论上的最大提升。有趣的是，在某些波长组合下，三个脉冲之间的相对载波包络相位关系变得无关紧要，这表明即使没有相对载波包络相位稳定性，仍然可以实现增强。这些截然不同的情形表明，要获得最大的太赫兹产生增强，需要载波包络相位稳定的激光系统；然而，采用特定的波长组合，即使没有载波包络相位稳定的光源，也能实现显著增强。

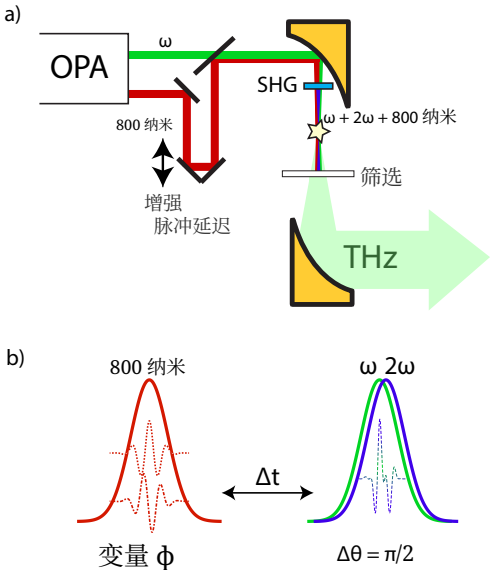

图1：a) 模拟实验装置，改编自 [14]。需要独立的光束线路来优化脉冲之间的相对延迟，然后它们共线聚焦以产生等离子体。b) 模拟参数的表示，主要变量是红外基频 ω、相对延迟 Δt 和 800 纳米内部相位 ϕ。

2 方法

我们采用等离子体产生的太赫兹辐射的光电流模型，[17] 更稳健、计算成本更高的粒子网格模拟已表明这是主要的产生机制。 [3] 仅使用光电流模型对太赫兹辐射进行建模已被证明足以提供实验趋势的定性分析。[14, 12, 10] 在光电流模型中，等离子体中的载流子数量根据以下公式计算：

$$\frac{dN(t)}{dt} = w(t)[N_g - N(t)] - r_t N(t), \tag{1}$$

其中， $N(t)$ 表示任意时刻 t 的载流子数， N_g 表示可用载流子的初始数密度， r_t 表示估算得到的复合常数。复合发生的时间尺度长于生成过程，因此通常可以忽略复合项。隧穿速率 $w(t)$ 根据驱动场 $E(t)$ 的大小计算如下：

$$w(t) = \frac{\alpha}{\hat{E}(t)} exp(-\frac{\beta}{\hat{E}(t)}). \tag{2}$$

Where $\alpha = 4\omega_a r_H^{5/2}$, $\beta = (2/3) r_H^{3/2}$, $\omega_a = 4.134 \times 10^{16} s^{-1}$ 是原子频率单位 and $r_H = U_{N_2}/U_H$是氮气的电离势（15.6 eV）相对于原子氢（13.6 eV）。We also define $\hat{}E(t) = |E(t)|/E_a$ 为激光电场在原子单位下的绝对值（$E_a = 5.14 \times 10^{11}$ V/m）。发射的太赫兹场正比于等离子体中发生的电子位移电流的导数，即载流子产生函数与电场的乘积：

$$E_{emit} \propto \frac{e^2}{m_e} E(t) N(t). \tag{3}$$

基于这一模拟发射，我们将太赫兹产率计算为傅里叶变换平方的绝对值的平方根，频率范围限定为 0.1 至 10 太赫兹。

我们在计算中模拟的实验装置如图1所示。按照Sorenson等人[14], 的做法，选择可变的红外基频，并使其通过一块经过最佳对准的倍频晶体（SHG）进行聚焦。从 OPA中取出的多余800纳米光沿同一聚焦路径重新引入，并具有可变的相对延迟。在某些延迟和相对功率下，通过加入800纳米光束，可以进一步增强红外光束的优化太赫兹生成。驱动脉冲的相位因素详见图1b。红外基频（ω）及其二次谐波（2ω）之间的相对延迟固定为 $\pi/2$，这种设置可优化太赫兹输出，实际中通过对准SHG 晶体实现。参考太赫兹产额仅使用这两种颜色进行计算。基频在1100纳米至2000 纳米范围内变化，代表OPA 可实现的驱动频率。随后将其与存在第三束800纳米光束时的输出进行比较。除了脉冲的内部相位（ϕ）外，还改变相对延迟。对于本研究，我们保持红外基频的能量通量不变，对应的脉冲能量为 240 μJ；800纳米光束的能量通量对应的脉冲能量为 1930 μJ（见 [14]的SI）。所有脉冲均采用高斯光束轮廓建模，并将 75 飞秒设为半高全宽。800纳米脉冲的相对相位是本研究特别关注的因素。在实验装置中，当光束沿不同光路传播时，由于光学抖动和波动，很难确保固定的相对相位。无论是否能够实现三束脉冲之间的固定相对相位，我们的计算都考虑固定相位和随机相位两种情形。在固定情形下，所有脉冲的载波包络相位均保持稳定。为模拟随机相位情形，我们计算一系列相对相位延迟（ϕ）下的太赫兹辐射，然后对每个相位产生的电流取平均值（见图 2）。对不同相位下的电流进行平均，重现了实验中的单次测量平均条件。

3 结果与讨论

图 2 显示了载波包络相位稳定与不稳定两种情况下的模拟结果，分别对应 1450 纳米和 1600 纳米基频。如图 2a 所示，在最佳相对延迟下，发射的太赫兹脉冲得到增强，
由于载流子电离更加有利并且随后能够生成电流，平均值高于由相位不稳定的800纳米脉冲产生的结果。如果800纳米光束在双色光束之前到达（负相对延迟），由于载流子在没有形成净电流漂移所需的不对称推动力的情况下被释放，太赫兹辐射会受到抑制。对于与第三个脉冲的频率不是整数谐波关系的主红外波长（1450纳米，蓝色点线，见图2b），在最佳延迟下，800纳米脉冲的具体相位并不重要，并且在对所有可能相位取平均值时，增强效果始终存在。然而，当主波长具有整数谐波关系时（1600纳米，红色虚线，见图2c），对于800纳米脉冲的不同固定相位（ϕ），结果会有很大差异。驱动脉冲的整体对称性对第三束光的加入更加敏感；与非整数谐波关系的情况（1450纳米）相比，我们看到整数谐波关系情况下（1600纳米）的平均结果不太理想。然而，如果能够保持第三束光的相位稳定并进行适当优化，那么太赫兹辐射就有可能获得最大的增益。例如，图2c中对应于 $4\pi/10$相位的绿色实线，其最大增强因子超过四倍，高于对1450纳米情况（图2b）的预测结果。

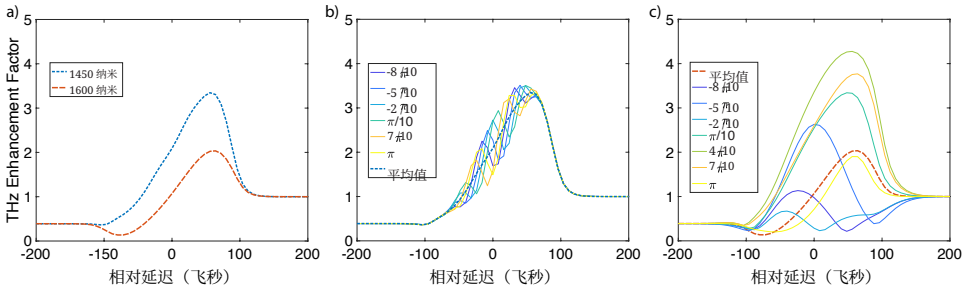

图 2：我们将太赫兹增强因子计算为存在和不存在 800纳米脉冲时太赫兹产率之比，其中 800纳米脉冲分别存在于驱动电离场中。正相对延迟表示 800纳米脉冲在包含红外基频及其二次谐波的脉冲之后到达。a）对于可通约情形（1600 纳米，红色虚线）和不可通约情形（1450 纳米，蓝色点线），经平均后的、相位不稳定的增强结果。b）对于 1450 纳米基频，单个固定载波包络相位下的稳定计算结果（实线）以及随机平均相位下的计算结果（点线）。在最佳相对延迟处，变化很小。c）对于 1600 纳米基频，固定载波包络相位下的稳定计算结果和随机平均相位下的计算结果（虚线）。每个单独相位都会产生截然不同的结果。

请注意，图 2c 中的平均值（红色虚线）不同于所示各相位的预期平均值；这是因为增强因子是根据标量产率计算的。平均值同时考虑了由电子电流导出的相位和幅值。在图3中，我们绘制了若干个针对1600纳米基频计算得到的电子电流。虽然我们使用电子电流的导数来计算辐射（公式3），但电子电流（尤其是图3中150飞秒之后出现的拖尾电流）能够很好地反映所产生太赫兹脉冲的幅值和相位。相位平均电流偏移（蓝色点线）并没有比计算得到的双光束参考值（黑线）大多少。最优的单一固定相位（浅橙色线）会产生大得多的电流和总体位移，但不同的相位可能产生位移方向相反的电流（紫色虚线）。

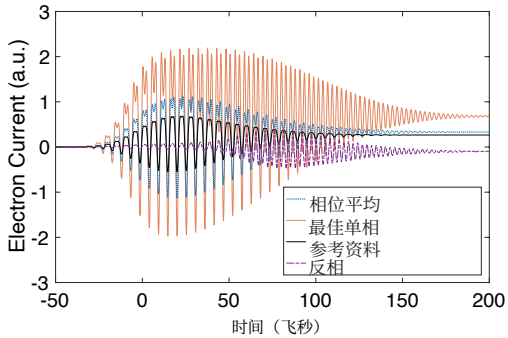

图 3：计算得到的1600 纳米基频下的电子光电流，其决定了所产生太赫兹脉冲的相位和幅度。在 150飞秒之后清晰观察到的偏离零值的低频位移，是太赫兹辐射的主要原因。所有可能的 800纳米第三束光相位的平均值（蓝色点线）相比于完全不使用第三束光（黑色实线）仅有小幅改善。最优固定相位的结果（浅橙色线）较平均值有显著改善。某些相位会导致电流向相反方向偏移（紫色线），这解释了最优单一相位与相位平均情况之间的差异。

在图 4 中，我们展示了将模型扩展到较大范围的红外基频波长后的结果。这里，我们仅报告驱动脉冲之间最佳相对延迟下的增强因子。这同样假设基频光包含二次谐波，并额外加入 800纳米脉冲。太赫兹场强的最大增益出现在相称波长处，大约以 1600 纳米为中心的显著特征便是证据，但这仅在固定相位条件下成立。各个固定相位结果（细线）提醒我们，在固定相位方案可能获得最高增益的相同情况下，太赫兹产率同样可能降低。随着波长组合变得越来越不相称，最佳单一相位情况与相位平均情况逐渐趋于一致。如1100 纳米、1400 纳米和1800纳米处所示，载波包络相位稳定情况与随机平均情况之间的差异极小。相反，在整数和分数谐波处，我们观察到更大的差异。 [18] 我们还注意到，尽管较长波长下太赫兹辐射的效率更高，但要产生太赫兹生成所需的最佳等离子体火花也变得越来越困难。 [7] 我们的方法考虑了由于存在增强用 800纳米脉冲而增加的Keldysh 电离隧穿效应，但未考虑使用较长波长时可能出现的聚焦困难。

我们的结果表明，除了双色方案之外，还存在两条通向最佳太赫兹生成的路径。为了获得理论上最高的太赫兹产率，所有光束必须采用频率成谐的颜色，并仔细选择它们的相对相位。这样便可以实现此前讨论过的最佳驱动场形状，例如锯齿波形。 [9]值得注意的是，在光束数较少的情况下，不同的相位组合可能更为有利。 [11] 然而，如果实验上无法实现相位稳定性，选择频率不成谐的颜色仍然可以提升太赫兹输出，同时避免对载波包络相位稳定性的担忧。

4 结论

总之，我们希望在多光束等离子体太赫兹生成中，弥合最优理论生成情景与实际实验考量之间的差距。我们证明，在实际约束条件下，非优化的、波长不相称的方案可以取得更好的结果，而这些约束使驱动脉冲之间的相对载波包络相位稳定性变得不可能。随着多谐波等离子体太赫兹生成方案不断改进，我们希望鼓励采用灵活且富有创意的方法，以实现稳定的太赫兹输出。

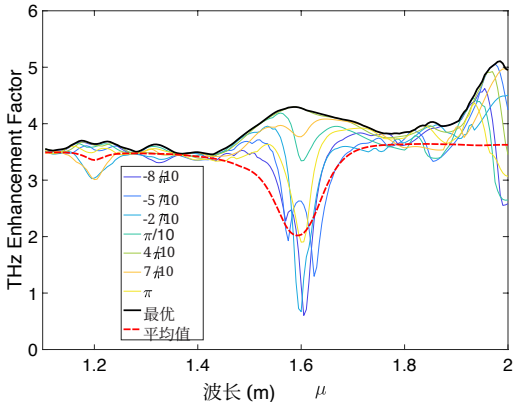

图 4：在相位平均（红色虚线）情况下以及选定的各个单独相位下，将最佳相位延迟处的太赫兹增强效果相对于基频红外频率作图。粗黑线表示使用固定单一相位时可能达到的最佳结果。单个稳定脉冲与平均后的不稳定相位情形之间的最大差异出现在相称波长处。较小的特征对应于分数次谐波。

参考文献

[1] H. Y.Hwang、S. Fleischer、N. C.Brandt、B.G. Perkins、M.K. Liu、K. B. Fan、A. Sternbach、X. Zhang、R.D.Averitt和K. A. Nelson。超短桌面激光脉冲非线性太赫兹光谱学综述。现代光学杂志，62(18):1447–1479，2015。[2] D.J.Cook和R.M. Hochstrasser。空气中四波整流产生的强太赫兹脉冲。光学快报，25(16):1210–1212，2000。[3] V.A. Andreeva、O. G. Kosareva、N. A. Panov、D.E. Shipilo、P. M. Solyankin、M.N.Esaulkov、P.G. D. Martinez、A. P. Shkurinov、V. A.Makarov、L. Berge和S. L. Chin。基于空气的丝状等离子体产生超宽带太赫兹光谱。物理评论快报，116(6)，2016。[4] K. Y. Kim、J. H. Glownia、A.J.Taylor 和G.Rodriguez。对称性破缺激光场中超快电离空气产生的太赫兹辐射。光学快报，15(8):4577–4584，2007。[5] T.-J.Wang、C.Marceau、S. Yuan、Y. Chen、Q.Wang、F. Théberge、M. Châteauneuf、J. Dubois和S.L.Chin。外部聚焦对双色飞秒激光在空气中诱导的丝状等离子体太赫兹辐射的影响。激光物理快报，8(1):57–61，2011。[6] D.Kuk、Y.J. Yoo、E. W. Rosenthal、N. Jhajj、H.M.Milchberg和K.Y. Kim。空气中柱面聚焦双色激光脉冲产生可扩展的太赫兹辐射。应用物理快报，108(12)，2016。[7] M. Clerici、M. Peccianti、B. E.Schmidt、L.Caspani、M. Shalaby、M. Giguere、A. Lotti、A. Couairon、F. Legare、T.Ozaki、D.Faccio和 R. Morandotti。气体电离产生太赫兹波的波长标度。物理评论快报，110(25)，2013。[8] IrinaA. Nikolaeva、Daniil E. Shipilo、Nikolay A. Panov、WeiweiLiu、Andrei B.Savel'Ev和OlgaG.Kosareva。固定泵浦功率下双色飞秒丝状等离子体太赫兹产额的标度律。光子学，9(12):974，2022。[9] P. G. D.Martinez、I. Babushkin、L. Berge、S. Skupin、E. Cabrera-Granado、C. Kohler、U. Morgner、A.Husakou和J.Herrmann。利用锯齿波形增强激光场电离气体中的太赫兹产生。物理评论快报，114(18)，2015。[10] S. J. Liu、Z. Q.Fan、C. H.Lu、J. Y. Gui、C. Luo、S. X. Wang、Q. Q. Liang、B. Zhou、A. Houard、A.Mysyrowicz、V. Kostin和Y.Liu。飞秒三色锯齿场泵浦空气等离子体产生的增强太赫兹辐射的相干控制。物理评论 *A*，102(6)，2020。[11] Hajar Alirezaee、Mehdi Sharifian、Seyyed Mohammad Reza Darbani、Masoud Saeed、AbdollahEslamiMajd和AliReza Niknam。三色激光诱导空气等离子体的太赫兹辐射发射。欧洲物理学杂志*Plus*，135(4)，2020。[12] D. N. Ma、L. Q. Dong、R. Zhang、C. L.Zhang、Y. J.Zhao和L.L. Zhang。谐波三色激光场激发空气等离子体产生的太赫兹波发射增强。光学通信，481，2021。

[13] J. D. Bagley、C. D. Moss、S. A. Sorenson 和 J. A. Johnson。使用三个非公度波长的激光诱导等离子体太赫兹辐射产生。物理学杂志 *B*：原子、分子与光学物理，51(14)，2018。[14] S. A. Sorenson、C. D. Moss、S. K. Kauwe、J. D. Bagley 和 J. A. Johnson。利用光学参量放大器废弃光增强双色等离子体的太赫兹辐射产生。应用物理快报，114(1)，2019。[15] V. Vaicaitis、O. Balachninaite、U. Morgner 和 I. Babushkin。空气丝中三色激光脉冲产生太赫兹辐射。应用物理学杂志，125(17)，2019。[16] D.N. Ma、L.Q. Dong、M.H. Zhang、T. Wu、Y.J. Zhao、L.L. Zhang 和 C.L. Zhang。使用第三色飞秒激光激发双色激光场诱导空气等离子体，增强太赫兹波。光学快报，28(14):20598–20608，2020。[17] Ki-Yong Kim。超快激光与气体相互作用中相干太赫兹辐射的产生。等离子体物理学，16(5):056706，2009。[18] N. V. Vvedenskii、A. I. Korytin、V. A. Kostin、A. A. Murzanev、A. A. Silaev 和 A. N. Stepanov。利用飞秒脉冲的可调频半次谐波进行双色激光等离子体太赫兹辐射产生。物理评论快报，112(5):5，2014。