

微型等离子体的太赫兹科技探究*

刘抗 F. Buccheri 张希成[†]

(美国罗彻斯特大学光学研究所 美国纽约州罗彻斯特 14627)

2015-06-12收到

[†] email: xi-cheng.zhang@rochester.edu

DOI: 10.7693/wl20150802

Terahertz science and technology of micro-plasma

LIU Kang BUCCHERI Fabrizio ZHANG Xi-Cheng[†]

(The Institute of Optics, University of Rochester, Rochester NY 14627, USA)

摘要 激光诱导产生的空气等离子体作为太赫兹时域技术中的发射源和探测器,使涵盖整个太赫兹波段(0.1—10 THz)光谱测量成为可能,进一步加强了太赫兹时域技术在研究光和物质的相互作用时的重要作用。文章作者通过实验研究了从激光诱导的亚毫米量级等离子体(微型等离子体)中发射的太赫兹波,并发现这种技术可能大大降低基于等离子体的太赫兹技术所需的激光能量。另外,文中还介绍了其他和微型等离子体相关的未来研究方向,包括利用微型等离子体进行太赫兹探测的可能性。

关键词 太赫兹, 太赫兹源, 太赫兹探测, 光电离, 等离子体

Abstract The integration of ambient air plasma as both source and sensor in terahertz (THz) time-domain technology allows spectral measurements covering the elusive gap from 0.1—10 THz, further increasing the impact of THz science as a tool in the study of the four states of matter. In this article we describe our experimental investigations on the THz emission from a laser induced plasma of submillimeter size. The main emission direction is almost orthogonal to the laser propagation direction, unlike that of elongated plasmas. We show that laser pulse energies lower than 1 μJ are sufficient to generate measurable THz pulses from ambient air. This significant decrease in the required laser energy will make plasma-based THz techniques more accessible to the scientific community. Methods to further optimize the method, as well as other relevant THz technology, such as using micro-plasma as a THz wave sensor, are also proposed.

Keywords terahertz, terahertz source, terahertz detection, photoionization, plasma

1 太赫兹空气等离子体技术

空气等离子体产生太赫兹波的过程与气体电离密切相关,它所需要的阈值光强约为 10^{12} W/cm²。使用透镜或曲面镜聚焦激光,可以在焦点处达到阈值光强,从而产生电离现象,往往伴随非线性激光成丝现象的出现^[1]。激光成丝是高强度的光束通过非线性效应自聚焦的过程,能形成一个毫米

到厘米长度的等离子体通道。这个等离子体通道在非常短的直径范围(30—100 μm)内保持稳定,并能在比传统聚焦光束瑞利长度长得多的范围内保持高强度。

图1(a)显示了使用空气产生和探测太赫兹波的全光过程,我们称其为太赫兹空气偏压相干探测(THz-ABCD)。使用一个钛蓝宝石放大级激光器(~3 mJ, 30 fs, 1 kHz 重复频率,中心波长为800 nm)作为光源。激光通过一个100 μm 厚的BBO晶体聚焦产生二次谐波。基频光(ω)和它的

* 美国陆军研究实验室和美国陆军研究办公室(批准号: W911NF1110297)
资助项目

二次谐波 (2ω) 在电离等离子体处产生太赫兹波^[2]。太赫兹光束和基频光一起在第二个焦点处产生另一个等离子体作为探测区域。一个偏置电场加到探测区域提供一个二次谐波的本地振荡, 以便使用光电倍增管来进行相干探测^[3]。等离子体可发出很强的、方向性好的、超宽的太赫兹电场。

与广泛使用的通过光电晶体二阶非线性光学系数来产生和探测太赫兹波类似, 太赫兹波可以

利用空气的三阶非线性来探测。太赫兹波的空气等离子体光学系统^[4-7], 与大多数的太赫兹时域光谱系统^[8-12]的不同在于, 它使用空气或其他气体来进行宽带太赫兹波的产生和探测。

图 2(a)和(b)中红色曲线显示的是一个典型的激光诱导空气等离子体产生太赫兹的时域波形及频域谱, 它的带宽覆盖整个太赫兹间隙(0.3—10 THz)。

这样的利用空气作为载体的太赫兹发射或探测技术, 我们统称为太赫兹空气光子学。

除了以上介绍的以外, 太赫兹空气光子学还包括太赫兹辐射增强等离子体荧光 (THz-REEF) 技术^[13-16]。由于 THz-REEF 目前所用荧光波段 (约 357 nm) 在大气中的高透过率以及全方位辐射特性, 该技术可用于太赫兹波的远程探测。我们已经获得了距离为 30 m 的太赫兹波相干探测实验结果, 如图 3 所示。

2 利用微型等离子体的太赫兹空气光子学

太赫兹空气光子学所需的激光能量限制了该技术的广泛应用, 然而我们可以通过使用亚毫米级的等离子体 (微型等离子体) 取代普通非线性光丝 (几毫米至几厘米长) 来解决这个问题。一个直径为几微米的微型等离子体可以通过使用高数值孔径 (NA) 的物镜聚焦激光光束来产生。用该微型等离子体产生太赫兹波所需的能量和普通光丝相比, 可以减小几个数量级。我们

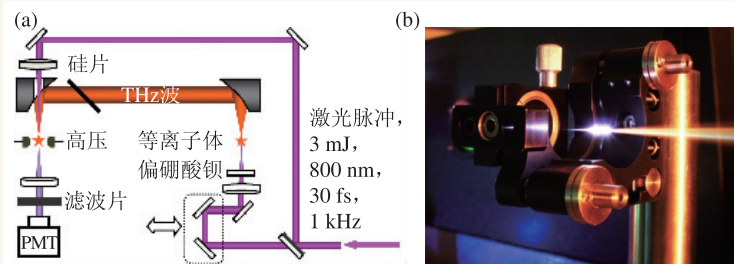


图 1 (a)太赫兹空气偏置相干探测原理图(图中 PMT 为光电倍增管); (b)激光诱导空气等离子体(中心的亮线)发出一个很强的太赫兹场

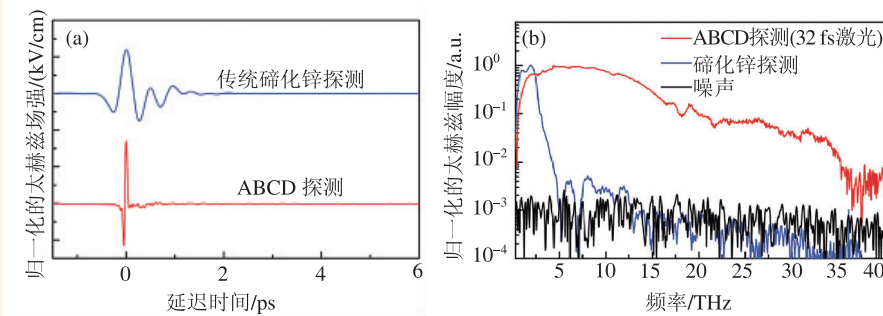


图 2 (a)用空气偏置相干探测(ABCD 探测)方法在干燥氮气中探测到的气体产生的太赫兹信号, 与传统晶体探测到的信号进行对比; (b)对数坐标的频域谱

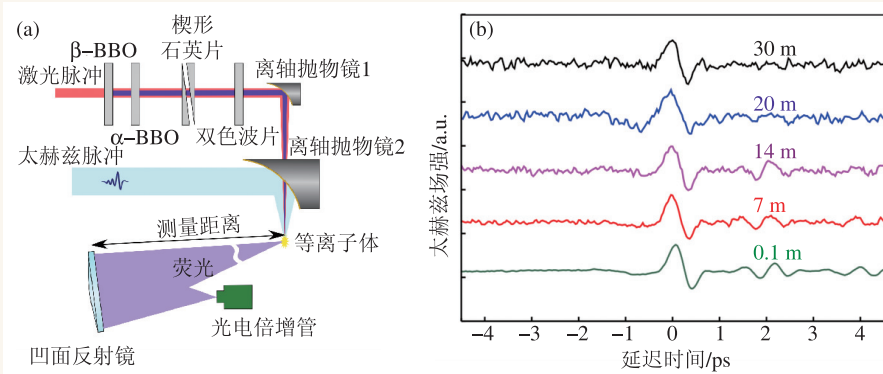


图 3 (a)THz-REEF 实验系统示意图; (b)利用 THz-REEF 技术在不同探测距离所探测到的太赫兹波形

最近在 *Optica* 杂志上发表的关于微型等离子体产生太赫兹波的文章^[17]中提到, 这种等离子体的太赫兹波发射方向与光轴几乎成直角, 因此, 太赫兹波和残余的激光光束在空间上被分开了, 此时的辐射被称为旁向太赫兹辐射。我们认为, 这种旁向太赫兹辐射的具体原理和有质动力有关^[18], 具体情况请参阅下一节内容。图 4(a) 是使用 0.85 NA 空气浸入式显微镜物镜聚焦一束激光束(65 μJ 脉冲能量)所产生的微型等离子体的荧光点的照片。我们通过 iCCD 相机观测到这个微等离子体的纵向和横向尺寸均小于 30 μm 。

图 4(b) 为测量微型等离子体太赫兹波发射角度分布的实验装置图。在该装置内, 泵浦光束可以绕着物镜焦点旋转, 而太赫兹波搜集和探测器则是被固定的。因此, 该太赫兹源的空间辐射分布形态可以被完整地表征。实验所用的激光光源是一台商业钛宝石放大激光器(800 nm, 100 fs, 1 mJ, 1 kHz)。泵浦光束被一个高数值孔径空气浸入式物镜聚焦, 以产生小于 30 μm 的微型等离子体。太赫兹辐射被一对离轴抛物物镜所搜集并且再聚焦。太赫兹波形被一块沿 $\langle 110 \rangle$ 方向切割的碲化锌(ZnTe)晶体利用自由空间电光探测法所采集。一片高阻硅片被置于太赫兹光路上, 用以阻拦残余的泵浦光束。

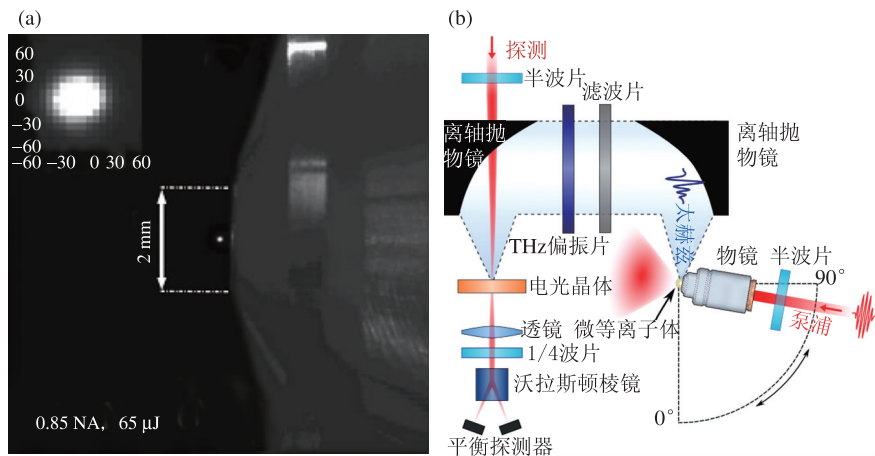


图 4 (a)微型等离子体荧光照片, 由 iCCD 相机拍摄, 插入图为微型等离子体的放大图片, 坐标单位为微米; (b)测量微型等离子体太赫兹波发射角度分布的实验装置图(应用了太赫兹时域光谱仪的原理)

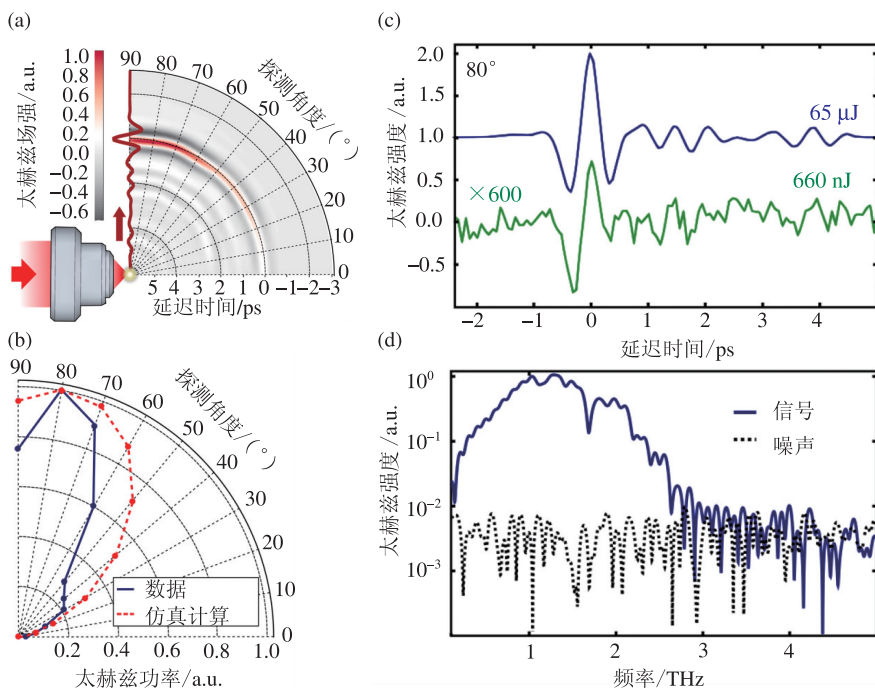


图 5 (a)和(b)分别为测量到的太赫兹场强以及功率同探测角度的关系, (b)图中虚线部分为仿真计算结果, 计算模型见文献[19]; (c)在 80°搜集到的太赫兹波形; (d) 65 μJ 太赫兹波形所对应的的光谱

图 5(a), (b)显示了太赫兹波形及功率随探测角度(激光传播方向和太赫兹波搜集器件光轴之间的角度)的变化。更具体地说, 当探测角度为零时, 我们探测到的是等离子体发出的前向太赫兹辐射; 而在探测角度为 90°时, 我们探测到的是太赫兹波的旁向辐射。图 5(b)表示, 当使用单色光激发时,

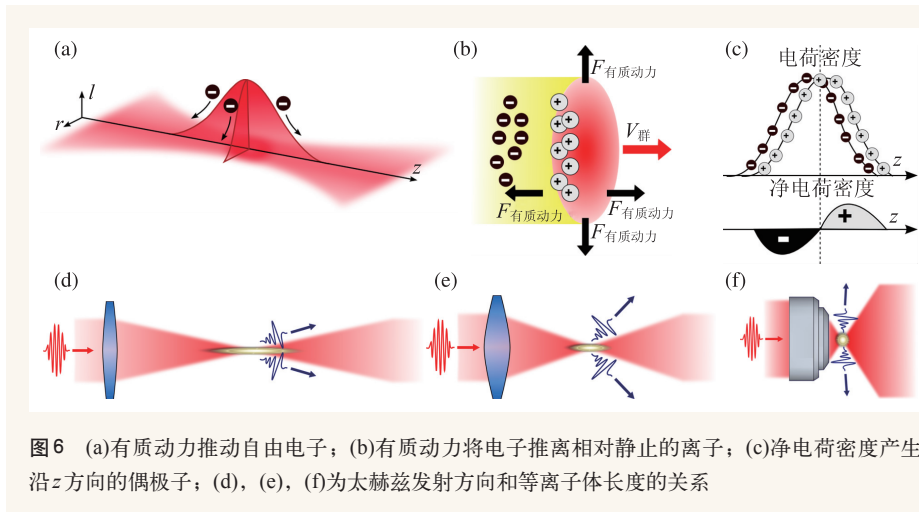


图6 (a)有质动力推动自由电子；(b)有质动力将电子推离相对静止的离子；(c)净电荷密度产生沿 z 方向的偶极子；(d)，(e)，(f)为太赫兹发射方向和等离子体长度的关系

太赫兹发射在离激光传播方向大概 80° 角处为最强。图5(c)显示了使用0.85 NA物镜聚焦不同能量激光脉冲所产生的太赫兹时域波形，其中红色波形代表了我们用现有的实验方法能探测到的最小波形，其相应的泵浦激光脉冲能量仅为660 nJ，和普通长形等离子体相比，其太赫兹产生能量阈值降低了一个数量级以上。利用具有更高重复率的脉冲激光可以进一步提高信号的信噪比。我们期望，利用具有250 kHz重复率的Coherent RegA激光器，泵浦脉冲能量阈值可以再降低一个数量级。

3 利用有质动力提高太赫兹波产生效率

单色激光诱导微型等离子体的太赫兹波产生机制很大程度上是由有质动力所决定的。一个带电粒子在不均匀振荡电磁场中所承受的有质动力可表示为

$$F_{\text{有质动力}} = -\frac{q^2}{4m\omega^2} \nabla |E|^2,$$

式中 q 为粒子的电荷， m 为质量， E 为电场强度。该 $F_{\text{有质动力}}$ 会将带电粒子推向低场强区域。

在单色激光诱导等离子体过程中，太赫兹波的产生是由于在泵浦光电离波前的后方有偶极子的生成(见图6)。和电子相比，离子有几个数量级以上的质量，因而在激光脉冲的超快时间标度上，离子可以被认为是静止的。然而电子由于有质动力的作用，被推向低场强区域，如图6(a)所示。在激光脉冲的时间长度范围内，大量电子被向后推，因而产生了一个沿着激光传播方向以飞

秒泵浦激光的群速度运动的偶极子团^[18]，如图6(c)所示。

以上介绍的机制所产生的太赫兹波呈锥状向前方辐射，锥体张开的角度随着等离子体长度的减小而增加。所使用的聚焦透镜焦距越短，等离子体长度越短，太赫兹辐射角度偏离激光传播方向越远，如图6(d)，(e)，(f)所示。

1994年，Hamster以及他的同事提出用下式表示单色激光诱导等离子体所产生的太赫兹波功率和泵浦激光参数的关系^[20]：

$$P_{\text{THz}} \propto \left(\frac{W}{R_0}\right)^2 \left(\frac{\lambda}{\tau}\right)^4,$$

式中 W 是激光脉冲能量， R_0 是激光光束在焦点处的半径， λ 是激光波长， τ 为激光脉冲长度。因此，上式预示着在太赫兹辐射功率和激光波长以及脉冲长度间有着非常强的关联性。太赫兹辐射功率和波长平方成正比，因为 R_0 和波长成正比。该式的完整实验验证尚未被报道。然而，最近一个加拿大的研究组成功地在长形双色激光诱导等离子体中测量了类似的辐射功率对激光波长的依赖关系^[21]。基于此，我们对单色激光等离子体提出，利用短脉冲和长波长激光激发以及短焦距聚焦来提高太赫兹辐射功率的构想。

4 微型等离子体太赫兹技术的前景和挑战

4.1 非对称光学激发产生微型等离子体

将一个激光光束的基频 ω 和其二倍频 2ω 混在一起，可以产生一个不对称的光学激发效应。对于长形等离子体来说，科学家们已经证实，利用不对称光学激发，太赫兹产生效率可以提高3个数量级^[22]。值得注意的是，在双色激光等离子体

中,有质动力仍在产生太赫兹辐射,只不过在长形等离子体的情况下,该效应要远远弱于不对称光学激发所产生的太赫兹波。如果我们用双色激光来产生微型等离子体这种极端情况,我们预估这两种物理效应将可同时进行研究,它们之间的对比也将成为可能。

4.2 研究激光诱导的微型等离子体中的电子动力学

等离子体中的太赫兹波发射可以用于研究/探测电子动力学。激光诱导的微型等离子体就可以成为这样的一个研究平台。事实上,不同于长形的等离子体,在微型等离子体中,激光强度和电子密度是不受制约的。因此,在单一实验中,实验者可以将电子密度改变几个数量级,可以达到没有或少有粒子碰撞的弱等离子体和有粒子碰撞的强等离子体两种情况的极限。当我们使用 $65 \mu\text{J}$ 脉冲能量和 0.85 NA 的显微镜物镜来聚焦的时候,经估算,电子密度约为 $10^{19}/\text{cm}^3$ 。进一步对电离的控制,可由双色激光激发来完成。

4.3 利用微型等离子体进行太赫兹波探测

基于太赫兹空气光子学的太赫兹波探测方法,例如太赫兹辐射增强等离子体荧光 (THz-REEF)^[13, 14] 和太赫兹空气偏压相干探测法^[5],都显示了能够涵盖 $0.1\text{--}10 \text{ THz}$ 的超宽带宽以及灵敏度。如果尝试使用微型等离子体进行如上实验,有可能使低能超快源空气探测成为可能。在实际运用中,最大的挑战来自于普通显微物镜的极有限的工作距离,它导致了普通实验设备中探测光束和泵浦光束同向传播的几何构成难以实现。然而在实验中,我们可以尝试使探测光束和泵浦光束同轴但是反向传播。这种方式可以克服显微物镜工作距离短的问题,但同时也给相干探测带来挑战。

4.4 利用微型等离子体实现亚波长量级太赫兹源

微型等离子体相对于其发射的太赫兹波而

言,其大小属于亚波长量级。其他产生亚波长量级太赫兹源的方式包括:短焦距聚焦泵浦激光于一个很薄的非线性晶体上(厚度小于 $20 \mu\text{m}$),或者将一个带有亚波长量级大小的小孔的金属档板置于太赫兹源前^[23]。这两种方法与空气微型等离子体方法相比各有弊端:非线性晶体薄片有着较低的机械稳定度,也较容易损伤,此外还要遭受晶体—空气界面对部分太赫兹波的全反射,而空气则没有这些问题;使用小孔的方法则会挡掉绝大部分太赫兹辐射,使能够穿过的太赫兹波实际功率过低。因此,使用微型等离子体来实现太赫兹波和微米乃至纳米结构的耦合是非常有吸引力的。

4.5 微型等离子体技术的机遇与挑战

微型等离子体技术所带来的最大的机遇就是在未来或许能够用激光振荡器而非放大器来进行太赫兹空气光子学研究。对于太赫兹空气光子学来说,最大的挑战就是等离子体的形成需要高峰值激光强度,而这需要使用放大器激光来完成。这样的光源往往昂贵且需要精密的维护。正是这个原因导致振荡器激光更受欢迎。事实上,根据我们的调查,在全世界范围内,纳焦脉冲能量级别的振荡器激光总数比毫焦级别的放大器激光总数多一个数量级以上,而一台振荡器激光的平均价格仅为放大器激光的 $1/4$ 至 $1/2$ 。目前,使用振荡器激光进行太赫兹空气光子学的希望渺茫,因为他们不能产生传统长形等离子体。然而,根据简单估算,使用一台 10 fs 脉冲长度、 80 MHz 重复率、 12.5 nJ 的振荡器激光,聚焦到直径为 $1 \mu\text{m}$ 的点,其峰值激光强度为 $10^{14} \text{ W}/\text{cm}^2$,大于空气的电离阈值 $10^{12}\text{--}10^{13} \text{ W}/\text{cm}^2$ 。同时,振荡器激光往往具有比放大器激光高得多的脉冲重复率,这也可以帮助提高所探测到的微型等离子体太赫兹波发射的信噪比。微型等离子体技术所面临的主要挑战则来自于太赫兹波的产生效率、搜集效率以及偏振控制的局限。

致谢 感谢华中科技大学武汉国家光电实验室金琪同学的讨论和帮助!



Connecting Global Competence

SOLUTIONS IN LIGHT



四大展区：激光器与光电子
激光生产与加工技术
光学与光学制造
成像，检测和质量控制

扫一扫，加微信！



展位预定，先到先得！☎ +86-21-20205500*887

www.photonicschina.cn
www.world-of-photonics-china.com

2016年3月15-17日
上海新国际博览中心W2、W3、W4、W5馆
中国光学行业完美展示平台

慕尼黑上海光博会
LASER World of PHOTONICS CHINA

参考文献

- [1] Couairon A, Mysyrowicz A. *Physics Reports*, 2007, 441: 47
- [2] 许景周, 张希成. 太赫兹科学技术和应用. 北京: 北京大学出版社, 2007. 48; Zhang X C, Xu J Z. *Introduction to THz Wave Photonics*. US: Springer, 2010. 97
- [3] Karpowicz N, Dai J, Lu X *et al.* *Applied Physics Letters*, 2008, 92: 011131
- [4] Xie X, Dai J, Zhang X C. *Physical Review Letters*, 2006, 96: 075005
- [5] Dai J, Xie X, Zhang X C. *Physical Review Letters*, 2006, 97: 103903
- [6] 戴建明, 谢旭, 张希成. *物理*, 2007, 36: 191
- [7] Lu X, Zhang X C. Investigation of Ultra-broadband Terahertz Time-domain Spectroscopy with Terahertz Wave Gas Photonics. In: *Frontiers of Optoelectronics. Terahertz Wave Science, Technology, and Application*. China: Higher Education Press, US: Springer, 2014. 121—155
- [8] Cook D J, Hochstrasser R M. *Optics Letters*, 2000, 25: 1210
- [9] Tzortzakis S, Méchain G, Patalano G *et al.* *Optics Letters*, 2002, 27: 1944
- [10] Kress M, Löffler T, Eden S *et al.* *Optics Letters*, 2004, 29: 1120; Löffler T, Kress M, Thomson M *et al.* *Acta Physica Polonica A*, 2005, 107: 99
- [11] Bartel T, Gaal P, Reimann K *et al.* *Optics Letters*, 2005, 30: 2805
- [12] Nahata A, Heinz T F. *Optics letters*, 1998, 23: 67
- [13] Liu J, Zhang X C. *Physical Review Letters*, 2009, 103: 235002
- [14] Liu J, Dai J, Chin S L *et al.* *Nature Photonics*, 2010, 4: 627
- [15] 刘晶乐, 张希成. *物理*, 2010, 39: 419
- [16] Liu J, Zhang X C. Terahertz Radiation-enhanced-emission-of-fluorescence. In: *Frontiers of Optoelectronics. Terahertz Wave Science, Technology, and Application*. China: Higher Education Press, US: Springer, 2014. 156—198
- [17] Buccheri F, Zhang X C. *Optica*, 2015, 2(4): 366
- [18] D'Amico C, Houard A, Franco M *et al.* *Physical Review Letters*, 2007, 98: 235002
- [19] D'Amico C, Houard A, Akturk S *et al.* *New J. Phys.*, 2008, 10: 013015
- [20] Hamster H, Sullivan A, Gordon S *et al.* *Physical Review E*, 1994, 49: 671
- [21] Clerici M, Peccianti M, Schmidt B *et al.* *Physical Review Letters*, 2013, 110: 253901
- [22] Kim K Y, Glowina J H, Taylor A J *et al.* *Optics Express*, 2007, 15: 4577
- [23] Liesener J, Reichert M, Haist T *et al.* *Optics Communications*, 2000, 185: 77