

引用本文:张佳荣,刘佳和,常超,等.三色激光脉冲诱导液体介质产生太赫兹波的仿真研究[J].光通信技术,2023,47(2):53-58.

三色激光脉冲诱导液体介质产生太赫兹波的仿真研究

张佳荣,刘佳和,常超,贺广超

(昆明理工大学 信息工程与自动化学院,昆明 650000)

摘要:研发大功率、高能量、高效率且能在室温下稳定运行的太赫兹辐射源是太赫兹技术领域迫切需要解决的实际问题。基于瞬态光电流模型,采用数值仿真方法研究了三色激光脉冲诱导液体介质产生太赫兹波的物理过程,分析了相位差、强度比、波长以及脉宽对太赫兹辐射的影响。仿真结果表明:二次谐波和三次谐波相对于基波的相位差、强度比、波长、脉宽等都对太赫兹电场有明显的影响。同时,只有电离率随着激光电场振荡变化的隧穿电离机制才能产生瞬态光电流,从而得到太赫兹辐射。

关键词:太赫兹波;飞秒激光;隧穿电离;液体等离子体

中图分类号:O441.4 **文献标志码:**A **文章编号:**1002-5561(2023)02-0053-06

DOI:10.13921/j.cnki.issn1002-5561.2023.02.011

开放科学(资源服务)标识码(OSID):



Simulation of terahertz wave generation in liquid medium induced by three-color laser pulse

ZHANG Jiarong, LIU Jiahe, CHANG Chao, HE Guangchao

(Faculty of Information Engineering and Automation, Kunming University of Science and Technology, Kunming 650000, China)

Abstract: The development of high-power, high-energy, high-efficiency terahertz radiation sources that can operate stably at room temperature is a practical problem that urgently needs to be solved in the field of terahertz technology. Based on the transient photocurrent model, this paper studied the physical process of three-color laser pulse-induced terahertz waves in liquid media by numerical simulations, and analyzed the effects of phase difference, intensity ratio, wavelength, and pulse width on the terahertz radiation. The simulation results show that the phase differences, the intensity ratios, the wavelength and the pulse width have obvious effects on the terahertz electric field. At the same time, only the tunnel ionization mechanism in which the ionization rate changes with the oscillation of the laser electric field can generate transient photocurrents, thereby obtaining terahertz radiation.

Key words: terahertz wave, femtosecond laser, tunneling ionization, liquid plasma

0 引言

太赫兹辐射是指频率为 0.1~10 THz, 波长为 30~3000 μm 的电磁辐射。随着超强超短脉冲的发展,高

度飞秒激光在太赫兹辐射的产生过程中起到重要的作用。基于飞秒激光的太赫兹辐射源有光电导天线、光学整流和激光诱导等离子体等^[1-4]。其中,基于激光诱导等离子体的太赫兹脉冲源凭借高场强、宽频谱和低成本的优势被广泛应用。

1993 年, HAMSTER H 等人^[5]第一次观察到飞秒激光诱导气体等离子体产生太赫兹辐射,并将这种脉冲辐射归因于激光脉冲带来的有质动力。随后, COOK D J 等人^[6]发现相比于使用单色激光脉冲^[7],使用双色激光脉冲的激发效果更好,能得到峰值电场约为 2 kV/cm 的太赫兹脉冲。2020 年, LIU S 等人^[8]通过实验发现三色锯齿波产生的太赫兹波电场比双色方案增强了 1.8 倍,实验中的第三次谐波由一个用于产生和频的 SFG 晶

收稿日期:2022-04-15。

基金项目:国家自然科学基金项目(No. 61971208)资助;云南省中青年学术技术带头人后备人才(2019HB005)基金项目资助;云南省万人计划青年拔尖人才(云南省人社厅 No. 2018 73)基金项目资助;云南省重大科技专项(202002AB080001-8)资助。

作者简介:张佳荣(1996—),男,硕士研究生,现就读于昆明理工大学信息工程与自动化学院电路与系统专业,主要从事激光诱导液体和气体介质产生太赫兹源方面的研究工作。



张佳荣,刘佳和,常超,等;三色激光脉冲诱导液体介质产生太赫兹波的仿真研究

体产生。同年,MA D 等人^[9]通过实验研究发现,由近红外飞秒激光脉冲(波长为 1 550 nm)及其二次谐波组成的双色激光电场诱导空气等离子体对产生的太赫兹波有增强作用,额外加入波长为 800 nm 的脉冲使太赫兹能量增加了 22 倍。文献[10–12]通过数值模拟和实验结果表明,相比于双色激光脉冲,三色激光脉冲能产生更强的太赫兹辐射;由于液体介质和气体介质均适用光电流模型,三色激光脉冲诱导液体同样能产生优于双色激光脉冲的辐射效果。本文基于瞬时光电流理论模型^[13–14],仿真分析三色激光诱导液体等离子体产生太赫兹辐射的物理过程,并探索液体等离子体产生太赫兹辐射的最优激励条件。

1 瞬态光电流模型

瞬态光电流模型由 KIM K Y 等人^[13]在 2007 年首次提出,该模型产生太赫兹辐射的过程可分为 2 个阶段。第一阶段,飞秒激光经过透镜聚焦后光致电离介质形成大量的自由电子;第二阶段,双色激光电场驱动大量自由电子运动,从而产生光电流,进而辐射太赫兹脉冲。本文研究的激励激光为三色偏振共线的高斯光束,表示为

$$E_L(t) = \exp\left(-\frac{2\ln 2 t^2}{\tau^2}\right) [E_1 \cos(\omega t) + E_2 \cos(2\omega t + \varphi_{12}) + E_3 \cos(3\omega t + \varphi_{13})] \quad (1)$$

其中, $E_L(t)$ 是驱动激光场, τ 是激光半高全宽, ω 是角频率, t 是时间, φ_{12} 是基波脉冲与二次谐波的相对相位差, φ_{13} 是基波脉冲与三次谐波的相对相位差。 E_1 、 E_2 和 E_3 分别是基波、二次谐波和三次谐波激光的电场振幅。

刚电离的电子初速度为零,产生后便随激光电场振荡运动。由于激光电场并非单色对称场,准自由电子在振荡同时伴随着漂移运动,在 t' 时刻的电子漂移速度^[10]为

$$v_d(t') = \frac{eE_1 \sin(\omega t')}{m\omega} + \frac{eE_2 \sin(2\omega t' + \varphi_{12})}{2m\omega} + \frac{eE_3 \sin(3\omega t' + \varphi_{13})}{3m\omega} \quad (2)$$

其中, t' 为电子的电离时刻, e 和 m 分别是电子的电荷量和质量。可以用速率方程描述液体介质中的准自由电子密度演变,如式(3)所示。

$$\frac{d\rho_w}{dt} = \eta_{MPI}\rho_w + W_T(\rho_0 - \rho_w) + \eta_{AI}\rho_w - \eta_{diff}\rho_w - \eta_{rec}(\rho_w)^2 \quad (3)$$

其中, η_{MPI} 、 W_T 、 η_{AI} 、 η_{diff} 、 η_{rec} 、 ρ_0 、 ρ_w 分别是多光子电离率、隧穿电离率、雪崩电离率、扩散系数、复合系数、液体

中初始中性电子密度、自由电子密度。从式(3)可以看出多光子电离、隧穿电离、雪崩电离、扩散效应以及复合效应对自由电子密度的影响。但在液体等离子体产生太赫兹的过程中,并不是所有的因素都对结果有显著的影响,文献[15–17]的研究表明, η_{MPI} 、 η_{AI} 、 η_{diff} 、 η_{rec} 的影响都可以忽略,而隧穿电离可以在每个光学周期产生相同方向的电流密度差额,从而形成电流浪涌,得到太赫兹辐射。因此,式(3)可以简化为

$$\frac{d\rho_w}{dt} \approx W_T(\rho_0 - \rho_w) \quad (4)$$

其中, W_T 的表达式可根据 Ammosov–Delone–Krainov (ADK)模型^[18–19]得到

$$W_T = \frac{\alpha}{|\varepsilon(t)|} \exp\left[-\left(\frac{\beta}{|\varepsilon(t)|}\right)\right] \quad (5)$$

其中, $|\varepsilon(t)|$ 为原子单位的电场, $|\varepsilon(t)| = E_L(t)/\varepsilon_a$, $\varepsilon_a = 5.14 \times 10^9$ V/cm, $\alpha = 4\omega_a r^{5/2}$, $\beta = (2/3)r^{3/2}$, ω_a 是原子频率单位, r 是液体介质分子相对于氢原子的电子势^[20]。

考虑所有电子的运动,产生变化的电子电流 $J(t)$ 可以表示为

$$J(t, t') = \int_t^t e v(t, t') d\rho_w(t') \propto W_T v_d(t) \quad (6)$$

其中, $v(t, t')$ 为电子当前时刻的实时速度, $\rho_w(t')$ 为在时间间隔 t' 和 $t'+dt$ 内由激光电场产生的自由电子密度。 t 时刻产生的光电流是此前所有时刻的瞬时电子密度乘对应电子的实时速度之积。因此,随时间变化的电子电流 $J(t)$ 产生一个太赫兹频率的电磁脉冲 $E_{THz}(t)$,其表达式为

$$E_{THz}(t) \propto \frac{dJ(t)}{dt} \propto \frac{d\rho_w(t)}{dt} v_d(t) \propto W_T v_d(t) \quad (7)$$

最后,通过傅里叶变换可以得到太赫兹波时域谱 $E_{THz}(\omega)$ 。

2 仿真分析与讨论

影响三色激光脉冲太赫兹辐射的因素有相对相位差、强度比、波长和脉宽等,结合瞬态光电流模型,在三色激光偏振共线条件下,本文使用 Matlab 2019A 软件对以上几种影响因素产生太赫兹辐射的过程进行数值模拟与分析。

2.1 相对相位差

基于多色激光产生太赫兹辐射的最大优势在于可以对太赫兹辐射进行相干控制,即通过改变多色光的相对相位以达到对太赫兹辐射强度和偏振的控制。具体来说,不同的相位条件决定了自由电子定向漂移的速度和方向,从而得到不同的太赫兹辐射强度和偏

振。本文仿真使用总激光强度为 $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 、基波波长为 800 nm 、激光强度比为 $1:0.2:0.08$ 、激光脉宽为 50 fs 的三色激光脉冲。通过改变相对相位差 φ_{12} 、 φ_{13} 来研究其对太赫兹辐射的影响, 结果如图 1 所示。可以看出, 太赫兹电场强随相对相位差 φ_{12} 、 φ_{13} 周期性变化, 周期为 2π 。当 $\varphi_{12}=5\pi/12$ 、 $\varphi_{13}=3\pi/4$ 时, 三色激光脉冲产生的太赫兹辐射最强。

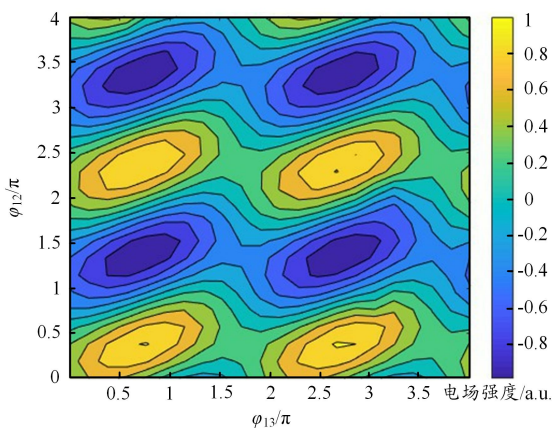


图 1 太赫兹电场与相对相位差的关系

2.2 强度比

传统双色光方案的二次谐波由光路中倍频晶体(如偏硼酸钡晶体)产生, 一般转化率约为百分之十。如果要继续产生三次谐波, 则需要再加入和频晶体产生和频效应。这种基于基波转化的谐波产生方式对强度比的调整区间有很大限制。如果三色激光脉冲分别来源于不同泵浦源, 并且可以对强度进行分别调整, 则会大大增加强度比可控范围。设 φ_{12} 、 φ_{13} 分别为 $5\pi/12$ 、 $3\pi/4$, 其它参数设置不变, 本文通过调整三色激光脉冲的强度比来研究其对太赫兹辐射的影响, 结果如图 2 所示。可以看出, 当三色激光脉冲的基波强度与二次

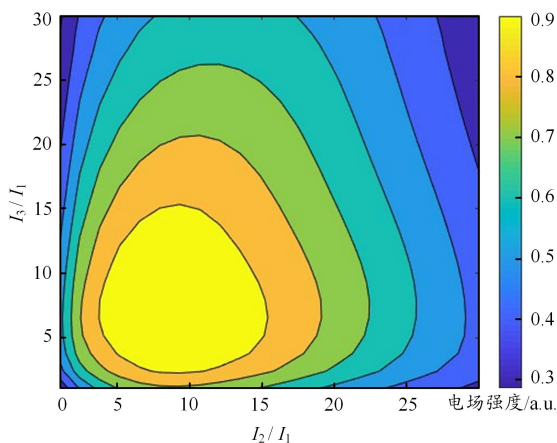


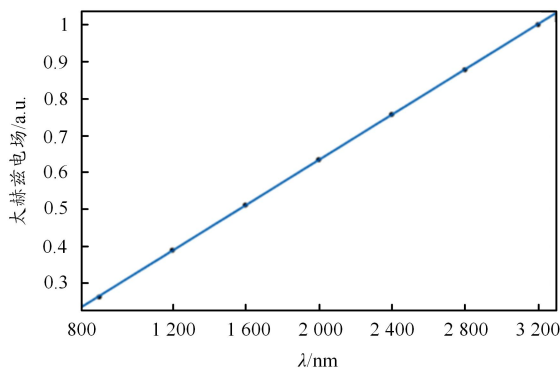
图 2 太赫兹电场与强度比的关系

谐波的比值(I_2/I_1)、三次谐波强度的比值(I_3/I_1)分别为 $8:1$ 、 $7:1$ 时, 太赫兹辐射最强。

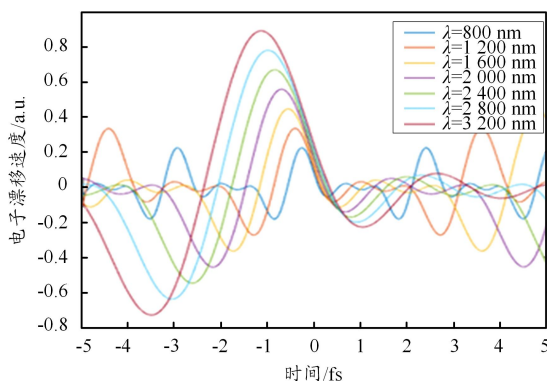
2.3 激光波长

本文设三色激光强度比为 $1:8:7$, 激光波长 λ 分别为 800 、 $1\ 200$ 、 $1\ 600$ 、 $2\ 000$ 、 $2\ 400$ 、 $2\ 800$ 、 $3\ 200 \text{ nm}$, 其它参数设置不变, 研究三色激光波长对太赫兹辐射的影响, 得到太赫兹电场和电子漂移速度与激光波长的关系, 具体如图 3 所示。可以看出, 随着激光波长的增大, 太赫兹电场线性增加, 电子漂移速度也更大。不同激光波长下的电离率与其局部图分别如图 4(a)和图 4(b)所示。可以看出, 电离事件发生在电场峰值处, 激光波长虽然能增大总电离, 但每个电离事件的时间都会增强。电子电流密度与激光波长的关系如图 4(c)所示。可以看出, 除了振荡特征外, 三色激光电子电流 $J(t)$ 是不对称分布的, 在激光脉冲消失后还会出现非零的直流电流, 在远场处产生太赫兹辐射。

以上分析可知, 激光波长的改变对总自由电子密度没有影响。太赫兹的电场幅值大小取决于每一个电离事件的叠加情况。在长波长情况下, 电子电离集中于较少的电离事件, 并且在这些电离事件中获得了更大的漂移速度。



(a) 太赫兹电场与激光波长的关系



(b) 电子漂移速度与激光波长的关系

图 3 太赫兹电场和电子漂移速度与激光波长的关系

张佳荣, 刘佳和, 常超, 等: 三色激光脉冲诱导液体介质产生太赫兹波的仿真研究

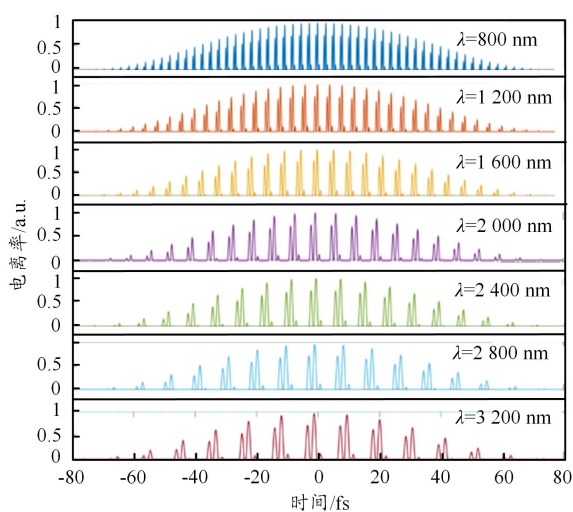


图4 不同激光波长下的电离率与其局部图以及电子电流密度

2.4 激光脉宽

本文设波长为 800 nm, 其它参数设置不变, 研究三色激光脉宽 r 对太赫兹辐射的影响, 结果如图 5 所示。可以看出, 随着激光脉宽 r 的增加, 太赫兹电场先是增大, 后约在 300 fs 时达到饱和, 这与文献[21]中实验得到的结论一致。

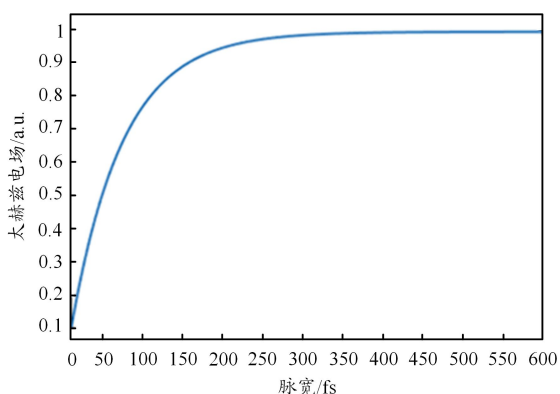


图5 太赫兹电场与激光脉宽 r 的关系

激光脉宽 r 分别为 50、350 fs 时的漂移速度和电离率如图 6、图 7 所示。可以看出, 随着激光脉宽 r 的增大, 漂移速度和电离持续时间增大。不同激光脉宽 r 下的自由电子密度如图 8 所示, 结合图 6、图 7 可知, 随着激光脉宽 r 增大, 漂移速度和电离持续时间会增大, 所以产生的自由电子密度也增大, 这与式(6)相符。

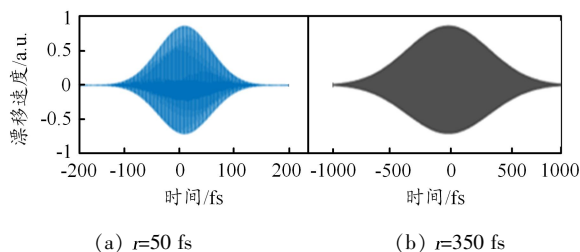


图6 不同脉宽下的漂移速度

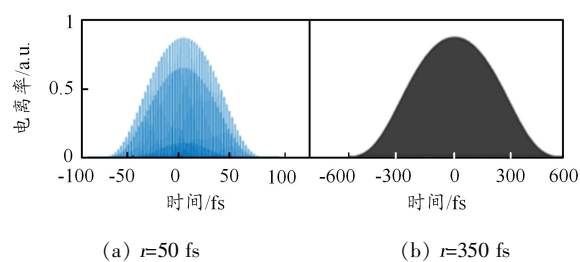


图7 不同脉宽下的电离率

由以上分析可知, 激光脉宽的增大可以增强太赫兹辐射的强度, 这主要是由于激光脉宽的改变影响了漂移速度和电离持续时间, 从而影响着自由电子密度。在激光脉宽约为 300 fs 时, 太赫兹电场达到饱和。这是因为优化的激光脉冲持续时间取决于液体介质中的有效路径长度, 而有效路径长度与液体线直径或者液体膜厚度相关, 即一个非常薄的液体线没有足够的长度或体积来与激光脉冲和液体分子相互作用, 而

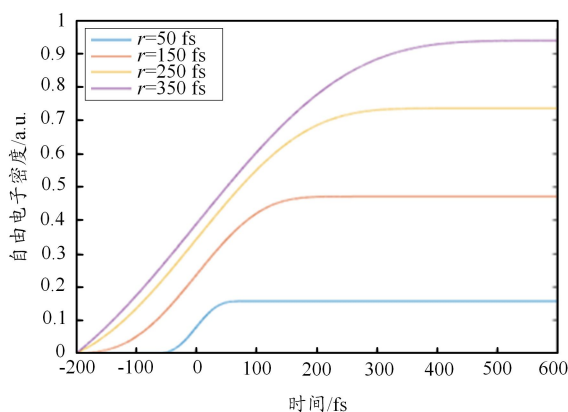


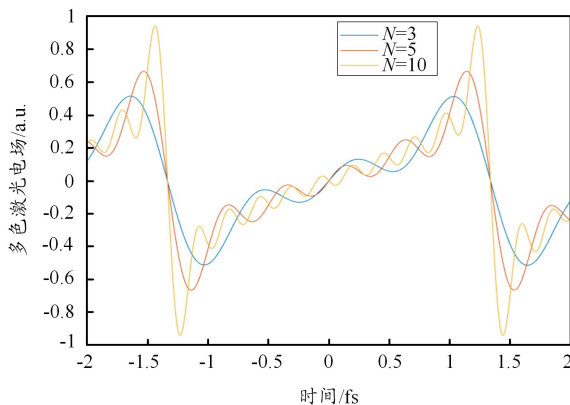
图8 不同脉宽下的自由电子密度

非常厚的液体线太赫兹吸收系数更高。

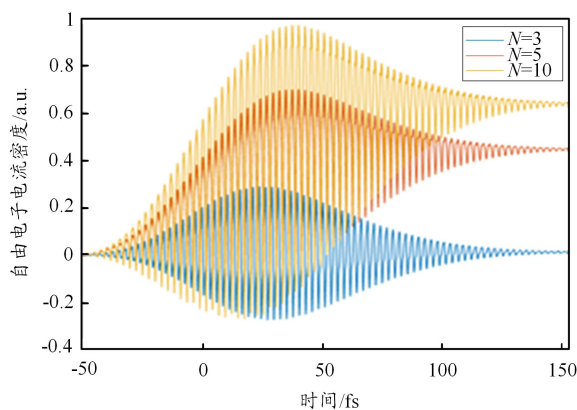
在相同的激光脉冲条件下,三色光方案比双色光、单色光方案产生太赫兹辐射更强,原因之一是三色光方案的激励电场更加不对称,锯齿波可能会产生更强的太赫兹辐射。多色激光电场的表达式^[22]为

$$E(t) = \sum_{k=1}^N E_k(t) = \sum_{k=1}^N \varepsilon_k(t) a_k \cos(k\omega_k + \varphi_k) \quad (8)$$

其中, N 为激光电场的激光颜色数量, ε_k 、 a_k 、 ω_k 、 φ_k 分别为第 k 次谐波的包络、相对幅度、角频率、相位差, $a_k = 1/k$, $\varphi_k = (-1)^k \pi/2$ 。假设激光电场包络为高斯包络, 则 $\varepsilon_k = E_0 e^{-t^2/\tau^2}$, E_0 是激光电场的振幅。当 $N \geq 3$ 时, 多色激光脉冲变成锯齿波形状, 如图 9 所示。可以看出, N 越大, 激光电场下降沿的绝对斜率越大。随着激光电场的不对称性增加, 与五色激光脉冲和三色激光脉冲相比, 十色激光电场产生自由电子电流更强, 从而产生更强的太赫兹辐射。因此, 标准锯齿波 (N 无穷大) 会产生更强的太赫兹场。这是因为标准锯齿波的激光电场不对称性大于三色激光脉冲的时间不对称性, 它决定了电离率和电子漂移速度更大, 产生的电子电流密度更大, 从而使太赫兹辐射更强。



(a) 多色激光电场



(b) 自由电子电流密度

图9 多色激光电场及自由电子电流密度

3 结束语

本文基于瞬态光电流理论建立了三色激光脉冲诱导液体介质产生太赫兹辐射的数值仿真模型, 研究了激光参数对太赫兹辐射的影响。仿真结果表明: 当二次谐波和三次谐波相对于基波的相位差分别为 $5\pi/12$ 、 $3\pi/4$, 强度比分别为 8:1、7:1 时, 能够得到的太赫兹辐射最强; 增大三色激光脉冲的波长可以增强太赫兹辐射; 由于液体介质存在有效路径长度, 随着激光脉宽的增加, 太赫兹电场也增加, 约在 300 fs 时达到饱和; 标准锯齿波可能会产生更强的太赫兹场。本文研究分析并仿真验证了太赫兹辐射的物理机制, 并为液体太赫兹辐射源的优化提供了思路。

参考文献:

- [1] SAMES C, MENARD J M, BETZ M, et al. All-optical coherently controlled terahertz AC charge currents from excitons in semiconductors [J]. Physical Review B, 2009, 79(4): 045208-1-045208-7.
- [2] 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.
- [3] 杨柳, 陈燕萍, 陈民, 等. 双色激光与气体作用产生太赫兹辐射的研究 [J]. 激光与光电子学进展, 2015, 52(7): 073001-1-073001-7.
- [4] 白亚, 许荣杰, 宋立伟, 等. 周期量级激光脉冲激发等离子体产生太赫兹辐射研究 [J]. 激光与光电子学进展, 2013, 50(8): 080004-1-080004-14.
- [5] 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.
- [6] COOK D J, HOCHSTRASSER R M. Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air [J]. Optics Letters, 2000, 25(16): 1210-1212.
- [7] ZHANG X C, BUCCHERI F. Terahertz photonics of microplasma and beyond [J]. Lithuanian Journal of Physics, 2018, 58(1): 1-14.

张佳荣,刘佳和,常超,等;三色激光脉冲诱导液体介质产生太赫兹波的仿真研究

- [8] LIU S, FAN Z, LU C, et al. Coherent control of boosted terahertz radiation from air plasma pumped by femtosecond three-color sawtooth field[J]. *Physical Review A*, 2020, 102(6): 063522-1–063522-7.
- [9] MA D, DONG L, ZHANG M, 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.
- [10] PEI M J, LU C H, WANG X W, et al. Enhancement and modulation of terahertz radiation by multi-color laser pulses [J]. *Chinese Physics B*, 2018, 27(8): 084209-1–084209-5.
- [11] ZHANG L, WANG G L, ZHOU X X. Optimized two- and three-colour laser pulses for the intense terahertz wave generation[J]. *Journal of Modern Optics*, 2016, 63(21): 2159–2165.
- [12] ALIREZAEI H, SHARIFIAN M, DARBANI S, et al. Terahertz radiation emission from three-color laser-induced air plasma[J]. *European Physical Journal Plus*, 2020, 135(4): 342-1–342-17.
- [13] KIM K Y, GLOWNIA 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.
- [14] KIM K Y, GLOWNIA J H, TAYLOR A J, et al. High-Power Broadband Terahertz Generation via Two-Color Photoionization in Gases [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 2012, 48(6):797-804.
- [15] WANG H, SHEN T. Unified theoretical model for both one-and two-color laser excitation of terahertz waves from a liquid [J]. *Applied Physics Letters*, 2020, 117(13): 131101-1–131101-4.
- [16] SOLLIER A, BERTHE L, FABBRO R. Numerical modeling of the transmission of breakdown plasma generated in water during laser shock processing[J]. *European Physical Journal Applied Physics*, 2001, 16(2): 131–139.
- [17] FENG Q, MOLONEY J V, NEWELL A C, et al. Theory and simulation on the threshold of water breakdown induced by focused ultrashort laser pulses [J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1997, 33 (2): 127–137.
- [18] AMMOSOV M V, DELONE N B, KRAINOV V P. Tunnel ionization of complex atoms and atomic ions in electromagnetic field [J]. *Proceedings of SPIE-The International Society for Optical Engineering*, 1986, 64(6): 1191–1194.
- [19] PENETRANTE B M, BARDSLEY J N. Residual energy in plasmas produced by intense subpicosecond lasers [J]. *Physical Review A*, 1991, 43(6): 3100–3113.
- [20] FAUBEL M, STEINER B, TOENNIEJ P. Photoelectron spectroscopy of liquid water, some alcohols, and pure nonane in free micro jets [J]. *Journal of Chemical Physics*, 1997, 106(22): 9013–9031.
- [21] YIWEN E, JIN Q, ZHANG X C. Enhancement of terahertz emission by a preformed plasma in liquid water [J]. *Applied Physics Letters*, 2019, 115(10): 101101-1–101101-4.
- [22] GONZALEZ D A M P, BABUSHKIN I, BERGE L, et al. Boosting terahertz generation in laser-field ionized gases using a sawtooth wave shape [J]. *Physical Review Letters*, 2014, 114(18): 183901-1–183901-5.