

基于非线性光学差频及参量效应的太赫兹源

王兵兵^{1,2} 黄敬国^{1,2} 陆金星^{1,2} 黄志明¹ 沈学民¹

(¹ 中国科学院上海技术物理研究所红外物理国家重点实验室, 上海 200083; ² 中国科学院研究生院, 北京 100049)

摘要 基于非线性光学技术的 THz 源具有其独特的性能和优点, 将基于非线性光学差频原理和光学参量效应, 从理论上研究并分析 THz 波与抽运光、闲频光及相位匹配角之间的关系, 得到 THz 波输出的条件和范围, 并设计出宽波段连续可调的 THz 源。以调 Q Nd:YAG 激光器和光学参量振荡器(OPO)作为抽运源, 以 GaSe 和 MgO:LiNbO₃ 晶体作为差频非线性晶体, 根据相位匹配理论及光学参量效应, 搭建两套 THz 波产生系统。其中, 基于光学参量效应的 THz 辐射源有效地产生出 THz 信号。

关键词 非线性光学; 太赫兹; 参量发生; 受激极化声子散射; GaSe 晶体; LiNbO₃ 晶体

中图分类号 O437.3 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/LOP48.051901

Terahertz Wave Sources Based on Difference Frequency Generation and Optical Parametric Processes

Wang Bingbing^{1,2} Huang Jingguo^{1,2} Lu Jinxing^{1,2} Huang Zhiming¹ Shen Xuemin¹

¹ National Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China
² Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract The THz source based on the nonlinear optical effects possesses the special properties and advantages. A theoretical study has been made for the generation of widely tunable narrow-band THz wave based on the process of the difference frequency generation (DFG) and the stimulated polariton scattering in a GaSe crystal and a MgO doped LiNbO₃ crystal, respectively. The relations among the THz wave, pump wave, idler wave and phase-matching angle are analysed. The condition and range of THz radiation generation are given. A Nd:YAG laser and an optical parametric oscillator (OPO) have been used to provide the pump and idler beams. A THz radiation generation system is built under collinear phase-matching conditions. A THz-wave parametric generator (TPG) is developed, and the TPG emits THz efficiently.

Key words nonlinear optics; terahertz; parametric generation; stimulated polariton scattering; GaSe crystal; LiNbO₃ crystal

OCIS codes 190.2640; 190.4975; 140.3070; 140.5560

1 引言

太赫兹(THz)波是指频率在 0.1~10 THz 范围内的电磁波, 又叫远红外或亚毫米波。在电磁波谱中, THz 所处的位置正好处于科学技术发展相对较好的微波毫米波与红外线之间, 形成一个相对落后的空白^[1,2]。THz 波产生是 THz 领域中一个非常关键的技术, THz 波的产生主要有基于光学和基于电子学两种方法。基于非线性光学差频原理和光学参量效应的 THz 源具有功率高、连续可调、结构简单、易于操作、室温运行等特点, 是产生 THz 波的主要方法之一。W. Shi 等^[3~5] 使用 GaSe 晶体, 实现了瓦量级峰值功率的 THz 输出, Kodo Kawase 等^[6,7] 采用 LiNbO₃ 晶体和 MgO:LiNbO₃ 晶体, 对 THz 参量发生器(TPG)和参量

收稿日期: 2010-08-22; **收到修改稿日期**: 2010-11-10

基金项目: 中国科学院重大科研装备研制项目(YZ200835)资助课题。

作者简介: 王兵兵(1985—), 男, 硕士研究生, 主要从事基于光学方法的太赫兹源方面的研究。

E-mail: wbb@mail.ustc.edu.cn

导师简介: 沈学民(1950—), 男, 博士, 研究员, 博士生导师, 主要从事光学遥感技术、卫星微波通讯、小卫星平台及等离子体毫米波技术等方面的研究。E-mail: shenxm@mail.sitp.ac.cn

振荡器进行了大量的研究,实现了宽波段高功率的 THz 输出。目前国内很多科研工作者对非线性差频 THz 源和 TPG 的研究大多都是关于理论方面的,在实验上能够成功产生出 THz 波的研究非常少。本文从理论上进行计算分析,得到太赫兹波输出的相位匹配条件,并搭建了两套 THz 产生系统,同时对实验结果进行分析讨论。

2 产生原理

2.1 基于 GaSe 晶体的 THz 差频源 (DFG)

GaSe 晶体是一种具有六角层状结构的负单轴晶体,对波长在 $0.62 \sim 20.00 \mu\text{m}$ 之间的光具有很高的透射率^[3]。在已知的无机非线性晶体中,GaSe 晶体对 THz 波的吸收系数最低,同时它具有比较高的二阶非线性系数($d_{22} = 54 \text{ pm/V}$)^[4,5]。

根据非线性晶体中三波相互作用理论,设进行非线性光学差频的两路光波长分别为 λ_1, λ_2 ,所产生的 THz 波波长为 λ_3 ,在相互作用过程中满足能量守恒定理和动量守恒定律

$$\frac{hc}{\lambda_1} - \frac{hc}{\lambda_2} = \frac{hc}{\lambda_3}, \quad k_1 = k_2 + k_3, \quad (1)$$

$$\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} = \frac{1}{\lambda_3}, \quad \frac{n_1}{\lambda_1} = \frac{n_2}{\lambda_2} + \frac{n_3}{\lambda_3}. \quad (2)$$

对于使用 GaSe 晶体,采用 II 类 ooe 共线相位匹配方式,如图 1 所示。实验中 $\lambda_1 = 1064 \text{ nm}$, $\lambda_2 = 1066 \sim 1083 \text{ nm}$,理论计算得到 THz 波长输出 $\lambda_3 = 60 \sim 600 \mu\text{m}$ ^[8]。

在非线性晶体中,设波矢 \mathbf{k} 与光轴 z 轴的夹角为 θ ,则 e 光的折射率

$$\frac{1}{n_e^2(\lambda, \theta)} = \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2(\lambda)} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2(\lambda)}. \quad (3)$$

由 ooe 相位匹配类型,结合(1)~(3)式可得

$$\frac{1}{\lambda_1} n_o(\lambda_1) = \frac{1}{\lambda_2} \left[\frac{\sin^2 \theta}{n_e^2(\lambda_2)} + \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2(\lambda_2)} \right]^{-1/2} + \frac{1}{\lambda_3} \left[\frac{\sin^2 \theta}{n_e^2(\lambda_3)} + \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2(\lambda_3)} \right]^{-1/2}. \quad (4)$$

再根据 GaSe 在 $0.65 \sim 18.00 \mu\text{m}$ 之间的色散方程^[9]

$$\left\{ \begin{array}{l} n_o^2 = 7.443 + \frac{0.4050}{\lambda^2} + \frac{0.0168}{\lambda^4} + \\ \frac{0.0061}{\lambda^6} + \frac{3.1458\lambda^2}{\lambda^2 - 2194} \\ n_e^2 = 5.760 + \frac{0.3879}{\lambda^2} - \frac{0.2288}{\lambda^4} + \\ \frac{0.1223}{\lambda^6} + \frac{1.855\lambda^2}{\lambda^2 - 1780}, \end{array} \right. \quad (5)$$

可得到相位匹配角 θ_m (θ_m 即为满足以上条件的 θ) 的范围为 $2.13^\circ \sim 11.72^\circ$, THz 波长 λ_3 与相位匹配角 θ_m 之间的关系如图 2 所示。

2.2 基于 MgO:LiNbO₃ 晶体的 TPG

TPG 是利用晶格本身或分子本身的共振频率来实现 THz 波的参量振荡和放大,是一种与极化声子相关的光学参量技术。极化声子是光子和声子的横波场发生耦合,产生的光声混态,受激极化声子散射辐射出 THz 波。当一束频率为 ω_p 的强抽运光入射到非线性晶体中时,基于二阶非线性极化效应,在晶体中便会通过自发辐射产生频率较大的闲频光 ω_i 和频率较小的信号光 ω_T (此时,非线性极化由电子运动引起,离子的贡献可忽略)。此时参量过程满足能量守恒,当满足动量守恒条件(即相位匹配条件)时, ω_i 和 ω_T 具有最大

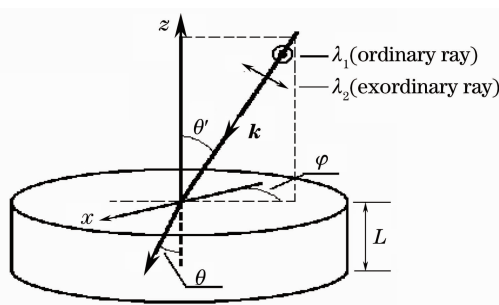


图 1 GaSe 晶体 ooe 共线相位匹配光学差频示意图
Fig. 1 Type-ooe collinear phase matching of the difference frequency generation (DFG) with GaSe

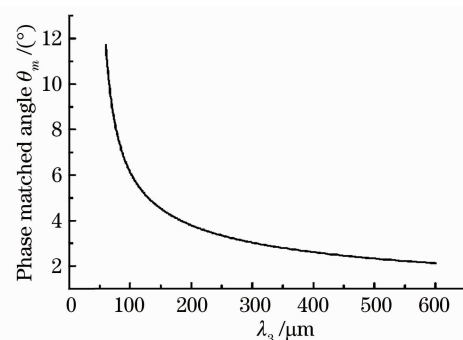


图 2 相位匹配角 θ_m 与 THz 波长 λ_3 的关系图
Fig. 2 Relationship between the phase matched angle θ_m and λ_3

的增益。当 ω_T 接近非线性晶体晶格振动能级时,非线性极化率会共振增强。 ω_T 与晶格振动模耦合时,便产生极化声子,若非线性晶体晶格振动模同时具有红外活性和拉曼活性,当抽运光 ω_P 足够强的条件下,便发生受激拉曼散射,产生斯托克斯光和 THz 辐射(此时,非线性极化是由离子振动产生的,是三阶非线性效应)。由于在整个过程中,非线性晶体没有参与能量的净交换,整个过程是参量过程。

LiNbO₃ 晶体(MgO:LiNbO₃晶体和 LiNbO₃晶体的性质基本一致)是负单轴晶体,透光区域约在 0.33~5.50 μm 范围,具有较大的非线性系数($d_{33} = 25.2 \text{ pm/V}$,波长在 1064 nm 处)^[10]。LiNbO₃晶体具有 4 个红外和拉曼活性横向光声(TO)模,叫作 A1 对称模。由于最低的 A1 对称模($\omega_{TO} = 248 \text{ cm}^{-1}$)具有最大的参量增益及最小的吸收系数,所以常用它来产生远红外,如图 3 所示^[7]。

当近红外的强抽运光 ω_P 入射到非线性晶体中时,会产生近红外的闲频光 ω_i 和 THz 光 ω_T 。此时,参量过程满足能量守恒和动量守恒:

$$\omega_P = \omega_i + \omega_T, \quad k_P = k_i + k_T, \quad (6)$$

实验时,在 LiNbO₃晶体中,抽运光 ω_P 为 e 光,产生的闲频光 ω_i 和 THz 光 ω_T 均为 e 光。在近红外波段 LiNbO₃晶体的色散方程为^[11,12]

$$\begin{cases} n_o = 4.9048 + \frac{0.11768}{\lambda^2 - 0.04750} - 0.027169\lambda^2 \\ n_e = 4.5820 + \frac{0.099169}{\lambda^2 - 0.04443} - 0.02195\lambda^2 \end{cases} \quad (7)$$

在远红外波段

$$\begin{cases} n_o^2 = 6.595 - 0.00091 \times \frac{10^4}{\lambda} + 0.000156 \times \left(\frac{10^4}{\lambda}\right)^2 - 0.0000003 \times \left(\frac{10^4}{\lambda}\right)^3 \\ n_e^2 = 5.0333 - 0.00031 \times \frac{10^4}{\lambda} + 0.000057 \times \left(\frac{10^4}{\lambda}\right)^2 - 0.0000002 \times \left(\frac{10^4}{\lambda}\right)^3 \end{cases} \quad (8)$$

根据(6)~(8)式,得到 THz 和闲频光输出与相位匹配角 θ (如图 3 所示,此时 θ 为抽运光与闲频光之间的夹角)之间的对应关系,如图 4 所示。从图中可以看出,THz 波波长随着角度 θ 的增加而减小,闲频光波长随着 θ 的增加而增大。

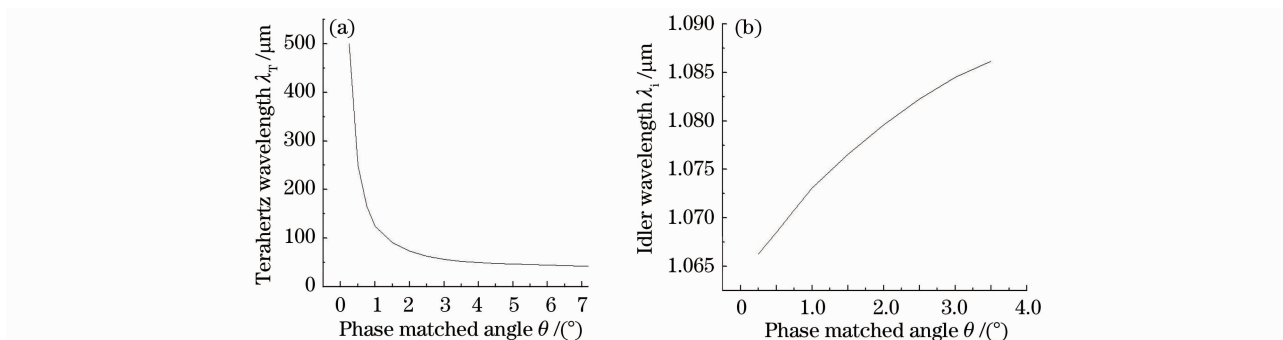


图 4 THz 波输出关系

Fig. 4 Calculated output relationship

3 实验

3.1 DFG 实验

实验采用美国 Cotinum 公司的 Sunlite 调 Q Nd:YAG 激光器作为抽运源,激光器的一端输出波长为

1064 nm 的抽运光,与之相连的光学参量振荡器(OPO)输出波长为 1066~1083 nm 的闲频光。Sunlite EX OPO 采用主振荡-功率放大的方案来实现窄线宽高能量参量光输出。1064 nm 的抽运光经过两个 KTP 晶体(第一个用于倍频,第二个用于和频)产生 355 nm 的三倍频光,在 Sunlite EX OPO 腔中,1064 nm 的光经过振荡极光栅耦合输出后与 355 nm 的光经过 BBO 晶体实现参量放大,输出的参量光经过一个双色镜分光后可得到实验所需 1066~1083 nm 的闲频光。实验采用 GaSe 晶体作为差频晶体,晶体直径为 5 mm,长度为 2 mm,光轴沿晶体轴线方向。实验中抽运光功率约为 30 mW,脉宽 7.8 ns,闲频光功率 25 mW,脉宽 3.8 ns,光斑直径约为 2 mm。实验采用 Golay Cell 作为探测器,可能是由于探测器灵敏度不够,或没能严格地实现角度匹配条件,或者晶体损伤(此时峰值功率密度约为 35 MW/cm^2 ,远小于厂家给定的晶体损伤阈值 180 MW/cm^2)的原因,实验中未观察到 THz 信号,实验光路如图 5 所示。

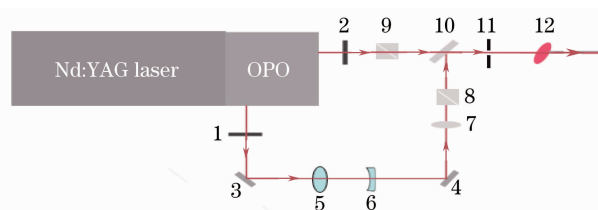


图 5 GaSe 晶体 oee 共线相位匹配
差频源实验光路图

Fig. 5 Experimental setup for THz radiation based on DFG in a GaSe crystal

图 5 中,1,2 为衰减片;3,4 为反射镜;5,6 为准直系统;7 为 $\lambda/2$ 波片;8,9 为偏振片;10 为分束镜;11 为光阑;12 为 GaSe 晶体。实验中可通过调节 $\lambda/2$ 波片来调节抽运光能量的大小。调节偏振片 8 使得抽运光为竖直偏振,调节偏振片 9,使得闲频光为水平偏振,通过分束镜 10,两束光共线射入 GaSe 晶体,在晶体中满足 oee 相位匹配。

3.2 参量源实验

实验时采用 $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 晶体,因为其具有比 LiNbO_3 晶体高 2 个数量级的损伤阈值。由于 $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 晶体的双折射,经理论分析表明,一种优化的配置方案是:在晶体内部,抽运光,闲频光,THz 光的偏振方向相同,均沿着光轴方向。1064 nm 入射光能量分别采用了 24.5,19.6 和 14.7 mJ;脉宽 7.8 ns,重复频率 10 Hz,光斑直径 2 mm,实验时采用两块 $3 \text{ mm} \times 4 \text{ mm} \times 60 \text{ mm}$ 的 LiNbO_3 晶体,两块晶体的前后表面均抛光并镀上 1064 nm 的抗反膜,光轴沿 4 mm 轴方向。实验时晶体光轴竖直放置,抽运光垂直于晶体光轴入射。其中第二块晶体侧面刻有光栅(光栅常数为 0.1 mm,刻槽深度为 $60 \mu\text{m}$)以更好地耦合出 THz 光。实验光路如图 6 所示。

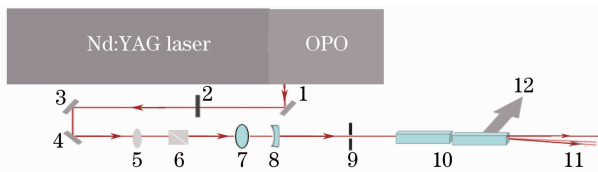


图 6 $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 晶体 THz 参量源实验光路图
Fig. 6 Experimental setup for THz radiation based on TPG in two $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ crystals

图中,1,3,4 为反射镜;2 为衰减片;5 为 $\lambda/2$ 波片;6 为偏振片;7,8 为光路准直系统;9 为光阑;10 为两块 $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 晶体;11 为斯托克斯光;12 为 THz 光。实验时,调节 $\lambda/2$ 波片来改变抽运光入射功率,调节光阑来改变光斑大小,使用光纤光谱仪来测量斯托克斯光的波长范围,使用 Bolometer 来探测 THz 信号。

4 实验结果与讨论

对于光学 DFG,实验中未观察到明显的 THz 信号,一种可能是由于 Golay Cell 探测器的灵敏度不够,未能探测到信号;另一种可能是由于激光强度太高导致晶体损伤,从而导致 THz 信号未能产生。实验中,两路光共线的调节及相位匹配角准确精细的调节是两处难点。

对于 TPG,实验观察到明显的斯托克斯光(闲频光),如图 7 所示。测得斯托克斯光的范围为 1067.33~1075.04 nm,随着相位匹配角 θ 的增大,测得斯托克斯光的波长逐渐增加,这与理论结果相符。

同时,使用 Bolometer 探测器探测到 THz 光信号,如图 8 所示。根据斯托克斯光的范围可计算出 THz 光的范围为 105.05~357.17 μm ,频率在 0.84~2.86 THz 范围内。

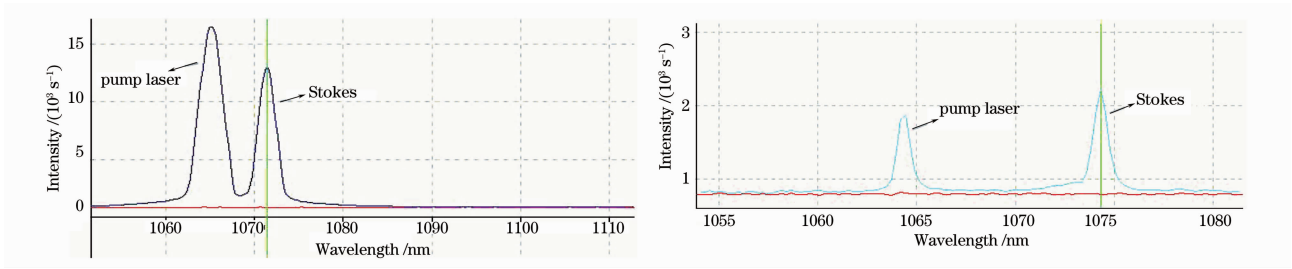


图7 使用波长计探测到的斯托克斯光

Fig. 7 Wavelength of Stokes detected by fiber-optic spectrometer

5 结 论

基于非线性差频原理和光学参量效应,利用 GaSe 和 MgO:LiNbO₃ 晶体,从理论上得到 THz 的输出条件和范围。同时进行了 THz 源的实验研究,搭建了两套 THz 产生系统,很好地实现了 THz 波的产生。实验系统将被进一步的优化,以更加有效地产生 THz 波,同时更加准确地对所产生 THz 波的波长和能量进行标定。根据实验结果,可以很好地说明基于光学参量效应的 THz 源是一种很有效的 THz 产生方法。

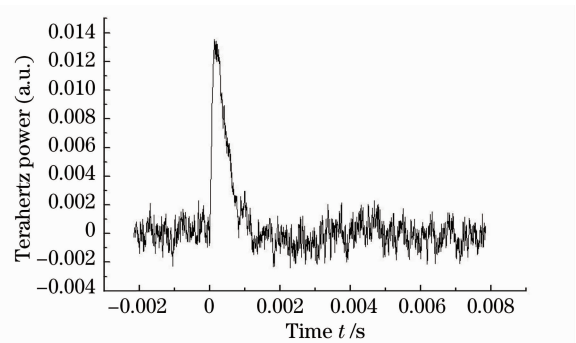


图8 Bolometer 探测器探测到的 THz 信号

Fig. 8 THz signal detected with a Bolometer detector

参 考 文 献

- Bradley Ferguson, Zhang Xicheng. Materials for terahertz science and technology[J]. *Physics*, 2003, **32**(5): 286~293
Bradley Ferguson, 张希成. 太赫兹科学与技术研究回顾[J]. *物理*, 2003, **32**(5): 286~293
- Liu Shenggang. Recent development of terahertz science and technology[J]. *China Basic Science*, 2006, **8**(1): 7~12
刘盛纲. 太赫兹科学技术的新发展[J]. *中国基础科学*, 2006, **8**(1): 7~12
- W. Shi, Y. J. Ding, Nils Fernelius *et al.*. Efficient, tunable, coherent 0.18-5.27-THz source based on GaSe crystal[J]. *Opt. Lett.*, 2002, **27**(16): 1454~1456
- Y. J. Ding, W. Shi. Widely tunable monochromatic THz sources based on phase-matched difference-frequency generation in nonlinear-optical crystals: a novel approach[J]. *Laser Physics*, 2006, **16**(4): 562~570
- Zhang Dongwen. Research on Terahertz Time-domain Spectroscopy of GaSe and Difference Frequency Generation of Terahertz Radiation in GaSe[D]. Changsha: National University of Defense Technology, 2008. 93~105
张栋文. GaSe 晶体太赫兹时域光谱及差频产生太赫兹辐射源研究[D]. 长沙:国防科学技术大学, 2008. 93~105
- Kodo Kawase, Jun-ichi Shikata, Hiromasa Ito. Terahertz wave parametric source[J]. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2002, **35**(3): R1~R14
- Koji Suizu, Kodo Kawase. Monochromatic-tunable terahertz-wave sources based on nonlinear frequency conversion using lithium niobate crystal[J]. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, 2008, **14**(2): 295~306
- Lu Jingxing, Huang Jingguo, Huang Zhiming *et al.*. The analysis of the effect of phase-mismatch and material absorption on the terahertz-wave generation from GaSe[J]. *Acta Physica Sinica*, 2011, **60**(2): 024209
陆金星, 黄敬国, 黄志明 等. 相位失配与晶体吸收对使用 GaSe 差频产生 THz 波功率影响的理论分析[J]. *物理学报*, 2011, **60**(2): 024209
- K. L. Vodopyanov, L. A. Kulevskii. New dispersion relationships for gas in the 0.65-18 μ -M spectral region[J]. *Opt. Commun.*, 1995, **118**(3~4): 375~378
- I. Shoji, T. Kondo, A. Kitamoto *et al.*. Absolute scale of second-order nonlinear-optical coefficients[J]. *J. Opt. Soc. Amer. B*, 1997, **14**(9): 2268~2294
- G. J. Edwards, M. Lawrence. A temperature-dependent dispersion equation for congruently grown lithium niobate[J]. *Opt. Quantum Electron.*, 1984, **16**(4): 373~375
- Xia Caipeng. Theoretic and Experimental Studies of Terahertz Parametric Generator Based on MgO:LiNbO₃ Crystal[D]. Xi'an: Xi'an Institute of Optics and Precision Mechanics of Chinese Academy of Sciences, 2009. 36~48
夏彩鹏. 基于 MgO:LiNbO₃ 晶体的太赫兹波参量发生器的理论与实验研究[D]. 西安:中国科学院西安光学精密机械研究所, 2009. 36~48