

多光子吸收对差频产生太赫兹波影响的理论研究

张玉萍^{1,2} 吴志心¹ 申端龙¹ 刘蒙¹ 尹贻恒¹ 张会云^{1,2} 钟凯² 姚建铨²

¹山东科技大学理学院 山东省太赫兹技术重点实验室 青岛市太赫兹技术重点实验室, 山东 青岛 266590

²天津大学精密仪器与光电子工程学院 激光与光电子研究所 光电信息技术教育部重点实验室, 天津 300072

摘要 理论分析了双光子和三光子吸收对非线性材料差频产生太赫兹(THz)波的影响,在不同抽运功率下,计算了相位失配情况下晶体的最佳作用长度和THz的最大量子转化效率,并将其与相位匹配情况进行对比。研究表明,抽运功率不太高时,多光子吸收对差频产生THz波影响不大;随着抽运功率的提高,多光子吸收的影响变得显著;抽运功率较高时,相位匹配与相位失配情况下,双光子和三光子吸收效应都增加了晶体的最佳作用长度,降低了THz的最大转化效率。研究了降低多光子吸收的方法。

关键词 非线性光学;太赫兹;差频;双光子吸收;三光子吸收

中图分类号 O436 文献标识码 A doi: 10.3788/LOP51.031901

Theoretical Analysis of the Influence of Multi-Photon Absorption on Terahertz Generation via Optical-Difference Frequency Generation

Zhang Yuping^{1,2} Wu Zhixin¹ Shen Duanlong¹ Liu Meng¹ Yin Yiheng¹

Zhang Huiyun^{1,2} Zhong Kai² Yao Jianquan²

¹Qingdao Key Laboratory of Terahertz Technology, Shandong Key Laboratory of Terahertz Technology, College of Science, Shandong University of Science and Technology, Qingdao, Shandong 266590, China

²Key Laboratory of Opto-Electronic Information Technology, Ministry of Education, Institute of Laser and Optoelectronics, College of Precision Instrument and Opto-Electronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China

Abstract A general analysis of the influence of two-photon or three-photon absorption on terahertz (THz) generation via optical-difference frequency generation from the nonlinear optical material is presented. We calculate the best length of crystal and the corresponding THz quantum conversion efficiency for different values of the pump peak power under phase-mismatched condition and compare the results with that in phase-matched condition. From the results we know that multi-photon absorption influence difference frequency generation slightly at low pump power and the impact will be strong with the increase of pump power. Because of the effect of two-photon or three-photon absorption, difference frequency generation at high pump power requires longer crystal to achieve the maximum photon conversion efficiency for both phase-matched and phase-mismatched situations. The maximum photon conversion decreases when pump power increases. We also present approaches to reduce this adverse effect.

Key words nonlinear optics; terahertz; difference frequency generation; two-photon absorption; three-photon absorption

OCIS codes 190.2620; 190.4180; 190.5040; 190.7070

1 引言

太赫兹(THz)波是指频率在0.1~10 THz(30~3000 μm)范围内的电磁波,其波段介于微波和红外线之间,

收稿日期: 2013-10-22; 收到修改稿日期: 2013-11-08; 网络出版日期: 2014-02-25

基金项目:国家自然科学基金(61001018)、山东省自然科学基金(ZR2011FM009,ZR2012FM011)、山东科技大学杰出青年自然科学基金(2010KYJQ103)、山东科技大学科研创新团队支持计划项目(2012KYTD103)、山东省高等学校科技计划项目(J11LG20)、青岛市科技计划项目(11-2-4-4-(8)-jch)和青岛经济技术开发区重点科技计划项目(2013-1-64)

作者简介: 张玉萍(1976—),女,博士,副教授,研究生导师,主要从事激光与太赫兹技术方面的研究。

E-mail: wrxpj@163.com

是宏观电子学向微观光子学过渡的重要电磁波段。THz波在物理、天文学、生命科学、医药科学、卫星通信和军用雷达等众多领域均有重大的科学研究价值和广阔的应用前景^[1-7]。THz波实际应用的关键是实现高效便携的THz波辐射源,而差频产生THz波是最具有潜力的光学方法之一,可以获得室温运转的窄带、高峰值功率、宽调谐THz辐射源。差频是利用非线性材料的二阶非线性效应,将频率为 ω_{p1} 的抽运光和 ω_{p2} 的信号光转化成频率为 ω_T ($\omega_T = \omega_{p1} - \omega_{p2}$)的THz波。

在光整流、光导天线、Cherenkov辐射、差频等光学产生THz波的方法中^[8],只有用窄频带光脉冲抽运的差频过程所产生THz波的功率在一定条件下是随激光器的抽运功率和晶体作用长度增加而增加的。因此,差频可能是接近量子转化效率极限的唯一方法。迄今所报道的接近量子转化效率极限的唯一一个实验结果^[9]就是采用差频方法获得的。为提高THz波能量转换效率,差频过程要求的抽运光强度很高,一般会超过数百兆瓦每平方米数量级,而如此高的功率密度意味着实验过程中会伴随其他的非线性吸收效应。

近几年,研究人员在理论和实验上对非线性吸收效应影响高强度激光抽运方法产生THz波效率方面做了大量工作。Gaivoronskii等^[10]研究了二次谐波与双光子吸收对超快激光脉冲通过光整流产生宽带THz波的影响;Xing等^[11]研究了高强度激光抽运时衍射与双光子吸收对输出THz的影响。由于高强度抽运时非线性吸收的不利影响,以及脉冲长度对样品长度的限制,在光整流过程中,即使采用高峰值强度的激光进行抽运,也不会达到量子转化效率极限。例如,用强度为 280 GW/cm^2 的激光进行光整流产生THz波,最大转化效率仅为 10^{-10} 左右^[12]。目前,国内外关于非线性光学差频的理论已经确立,Cherchi等^[13]对差频原理进行了全面而详尽的阐述和分析,Tochitsky等^[14-17]报道了利用高抽运峰值功率差频产生THz波的实验以及理论分析^[14-17],钟凯等^[18-20]在差频基本原理以及相位匹配技术等方面做了大量的理论与实验研究,陆金星等^[21]研究了相位失配以及材料吸收对差频产生THz波的影响。但关于非线性光学吸收(例如多光子吸收)对差频产生太赫兹波影响的文献还相当匮乏。差频产生THz的过程中,可以利用非线性晶体的双折射与色散特性达到三波相互作用的相位匹配,从而有效地进行非线性光学频率变换。Cherchi等^[22]研究了相位匹配情况下多光子吸收对差频产生THz波的影响^[22]。但在实际中,由于光波的发散角等多种因素,很难做到完全相位匹配,总是存在或大或小的相位失配量。因此,在相位失配情况下,研究多光子吸收效应对差频产生THz波影响具有重要意义。

本文建立了包含多光子吸收的耦合方程组,计算了该模型中不同多光子吸收系数情况下晶体的最佳作用长度和最大量子转化效率。详细分析了相位失配的情况下,双光子吸收(2PA)和三光子(3PA)吸收对窄频带抽运光差频产生THz波的影响,并将其与相位匹配情况进行比较。在此基础上,根据已发表文献中的实验数据,具体研究了多光子吸收对差频产生THz波的影响,并讨论了降低多光子吸收的方法。

2 理论模型

设差频过程中抽运光与信号光的频率分别为 ω_{p1} 和 ω_{p2} ,产生THz频率为 ω_T ,非线性系数为 d_{eff} ^[23]。差频有效面积设为 $S_{\text{DFC}} \equiv \langle e_1 | e_T \rangle \langle e_{p2} | e_{p2} \rangle \langle e_{p1} | e_{p1} \rangle / \langle e_T e_{p2} | e_{p1} \rangle^2$ ^[24],其中 $e_q(x, y)$ ($q = P1, P2, T$)是三波光电场的空间分布函数,文中假定有效面积不随传播距离变化。品质因数^[25]定义为 $F \equiv \rho^2 / \alpha^2$, α 为THz波的吸收系数, ρ 为耦合系数,表达式为 $\rho \equiv d_{\text{eff}} [2Z_0 \hbar \omega_T \omega_{p1} \omega_{p2} / (c^2 n_T n_{p1} n_{p2}) S_{\text{DFC}}]^{1/2}$,其中 c 是真空中光速, \hbar 是约化普朗克常数, Z_0 是真空中阻抗, n_q 是三波在晶体中的折射率。分别定义标准传播距离为 $Z \equiv z\alpha$,标准动量失配量为 $K \equiv 2\Delta k / \alpha$,标准光子流振幅为 $\hat{A}(z; t) \equiv \sqrt{F} A(z; t)$,得到标准的三波耦合方程:

$$\begin{cases} \frac{d\hat{A}_T}{dZ} = -i\hat{A}_{p1}\hat{A}_{p2}^* - \frac{1-iK}{2}\hat{A}_T \\ \frac{d\hat{A}_{p2}}{dZ} = -i\hat{A}_{p1}\hat{A}_T^* \\ \frac{d\hat{A}_{p1}}{dZ} = -i\hat{A}_{p2}\hat{A}_T^* \end{cases}, \quad (1)$$

在方程组(1)中,假设THz波的吸收长度远远大于THz的波长^[26],忽略光学损耗;脉冲持续时间不小于脉冲在系统中的传播时间,忽略群速度色散。 $\hat{A}(z, t)$ 函数为标准形式并且关于 z 轴是慢变化的,它的平方模是

光子通量 N_q (单位时间内的光子数目)。THz 波光束的束腰大小接近于 $r_R \equiv \sqrt{cL/(n_T \omega_T)}$, 所以其横截面在晶体长度 L 范围内可以看作常数^[27, 28]。

根据方程组(1), 用初始标准抽运光子通量 $\hat{N}_{A_{p10}} \equiv |\hat{A}_{p10}|^2 = FN_{A_{p10}}$ 、初始信号光和抽运光的光子通量之比 $R \equiv N_{A_{p20}}/N_{A_{p10}}$ 、标准的相位失配量 K 、标准的传播距离 Z 四个独立变量来描述所有差频产生 THz 波的过程。THz 的量子转化效率定义为 $\eta(N_{A_{p10}}, R, K, Z) \equiv N_{A_T}/N_{A_{p10}}$ 。当确定了这四个物理量中的两个时, 把另外一个一个作为自变量, 一个作为因变量, 求解方程组(1), 就可以计算并分析不同情况下最佳晶体作用长度和量子转化效率。为了便于分析, 引入参考功率 $\bar{P}_q \equiv \hbar \omega_q / F$ 和参考光强 $\bar{I}_q \equiv \bar{P}_q / S_{\text{DFG}}$, 定义标准功率与标准光强分别为 $\hat{P}_{q0} \equiv P_{q0} / \bar{P}_q = \hat{I}_{q0} \equiv I_{q0} / \bar{I}_q = \hat{N}_{q0}$ 。其中 \bar{P}_q 正比于 S_{DFG} , 而 \bar{I}_q 和 S_{DFG} 是相互独立的。

3 差频产生太赫兹过程中多光子吸收影响的模拟和分析

双光子吸收和三光子吸收分别对应三阶和五阶非线性光学效应, 在一般的非线性材料中, 光学线性吸收在近红外透明区域内均可以忽略, 而 2PA 与 3PA 仅在抽运光与信号光功率较小、频率在中红外附近才可以忽略。2PA 与抽运光强成正比, 3PA 与抽运光强的平方成正比, 所以高强度抽运时必须考虑其影响。

3.1 双光子吸收的影响分析

差频过程中抽运光与信号光有四种双光子吸收的情形, 如图 1 所示。考虑双光子吸收的影响, 需要对耦合波方程(1)进行修正, 表示为

$$\begin{cases} \frac{d\hat{A}_T}{dZ} = -i\hat{A}_{p1}\hat{A}_{p2}^* - \frac{1-iK}{2}\hat{A}_T \\ \frac{d\hat{A}_{p2}}{dZ} = -i\hat{A}_{p1}\hat{A}_T^* + \alpha_{2PA_{i_{p2}}} \\ \frac{d\hat{A}_{p1}}{dZ} = -i\hat{A}_{p2}\hat{A}_T^* + \alpha_{2PA_{i_{p1}}} \end{cases}, \quad (2)$$

其中, $\begin{cases} \alpha_{2PA_{i_{p2}}} = -\frac{1}{2}(\hat{f}_{A_{p2}A_{p1}}|\hat{A}_{p2}|^2 + 2\hat{f}_{A_{p2}A_{p1}}|\hat{A}_{p1}|^2)\hat{A}_{p2} \\ \alpha_{2PA_{i_{p1}}} = -\frac{1}{2}(\hat{f}_{A_{p1}A_{p2}}|\hat{A}_{p1}|^2 + 2\hat{f}_{A_{p1}A_{p2}}|\hat{A}_{p2}|^2)\hat{A}_{p1} \end{cases}$ 为修正项^[29], $\hat{f}_{pq} = \bar{P}/S_{pq} \times f_p/\alpha$ 是无量纲的双光子吸收系数,

$\bar{P}_p \equiv \hbar \omega_p / F$ 为参考功率, f_p 是频率为 ω_p 时的双光子吸收系数, $S_{pq} \equiv \langle e_p | e_p \rangle \langle e_q | e_q \rangle / \langle e_p e_q | e_p e_q \rangle$ 是 2PA 的有效作用面积。在差频产生 THz 波的过程中, 抽运光与信号光的频率近似相等, 即 $\omega_{A_{p1}} \approx \omega_{A_{p2}}$, 四种双光子吸收情形对应的有效作用面积也近似相等, 所以假定对所有的 p 和 q 的组合都有 $\hat{f}_{pq} \equiv \hat{f}$ 。在不同抽运光子通量, 即标准功率 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 下, 求解了方程组(2), 并计算了相位匹配和相位失配情况下晶体的最佳作用长度(以标准传播距离 Z 为单位)和 THz 的最大量子转化效率, 如图 2 所示, 计算中取抽运光与信号光的光子通量相等。

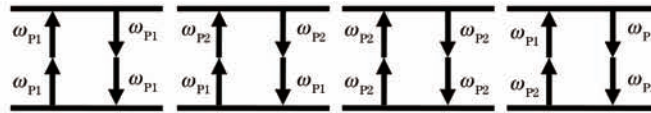


图 1 双光子吸收示意图

Fig.1 Transition diagrams of 2PA

图 2(a) 为相位匹配情况下晶体最佳作用长度 (Z_{max}) 随抽运功率 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 的变化关系图。从图中可知, 当 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 值较低时, Z_{max} 随着 \hat{f} 的增加而减小, 而当 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 值较高时, Z_{max} 随着 \hat{f} 的增加而增大。图 2(b) 为相位匹配的情况下最大量子转化效率 η_{max} 随抽运功率 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 的变化关系图。从图中明显看出, 当 $\hat{f} = 0$ 时, η_{max} 随 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 的增大而增大, 最终达到最大值; 当 $\hat{f} \neq 0$ 时, 也就是存在双光子吸收的情况下, η_{max} 到达某 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 值所对应的最大值之后开始减小。图 2(c)~(h) 为相位失配量分别表示 $K=2$ 、 $K=4$ 和 $K=6$ 的情况下 Z_{max} 与 η_{max} 随抽运功率 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 的变化。图中可以看出, 当 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 值较低时, Z_{max} 和 η_{max} 随着相位失配量的增大而减小; 当 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 值较高时, Z_{max} 和 η_{max} 的值与相位匹配情况下基本相同。在抽运光功率较低时, 晶体的最佳作用长度与 THz

的最大转化效率随着相位失配量的增加而减小,双光子吸收效应的影响不明显。抽运光功率较高时,相位匹配时,双光子吸收效应使晶体的最佳作用长度变长,同时降低了THz的最大转化效率;相位失配时,双光子吸收对差频晶体的最佳作用长度和最大转化效率的影响与相位匹配时类似。

图3(a)、(b)分别表示相位匹配与失配情况下THz波的最大量子转化效率 η_{\max} 及相应的抽运功率 $\hat{P}_{A_{\text{P10}}}$ 随双光子吸收系数 \hat{f} 的变化示意图。从图可知, $\hat{P}_{A_{\text{P10}}}$ 的值随 \hat{f} 值的增加而减小,随相位失配量 K 的增加而增大; η_{\max} 随着 \hat{f} 值的增加而减小,同时随着相位失配量的增加也减小。这表明,与相位匹配情况相比,相位失配使最大转化效率对应的抽运光功率增加,降低了最大转化效率。当双光子吸收效应强烈时,会严重影响差频转换所能达到的最大转换效率。

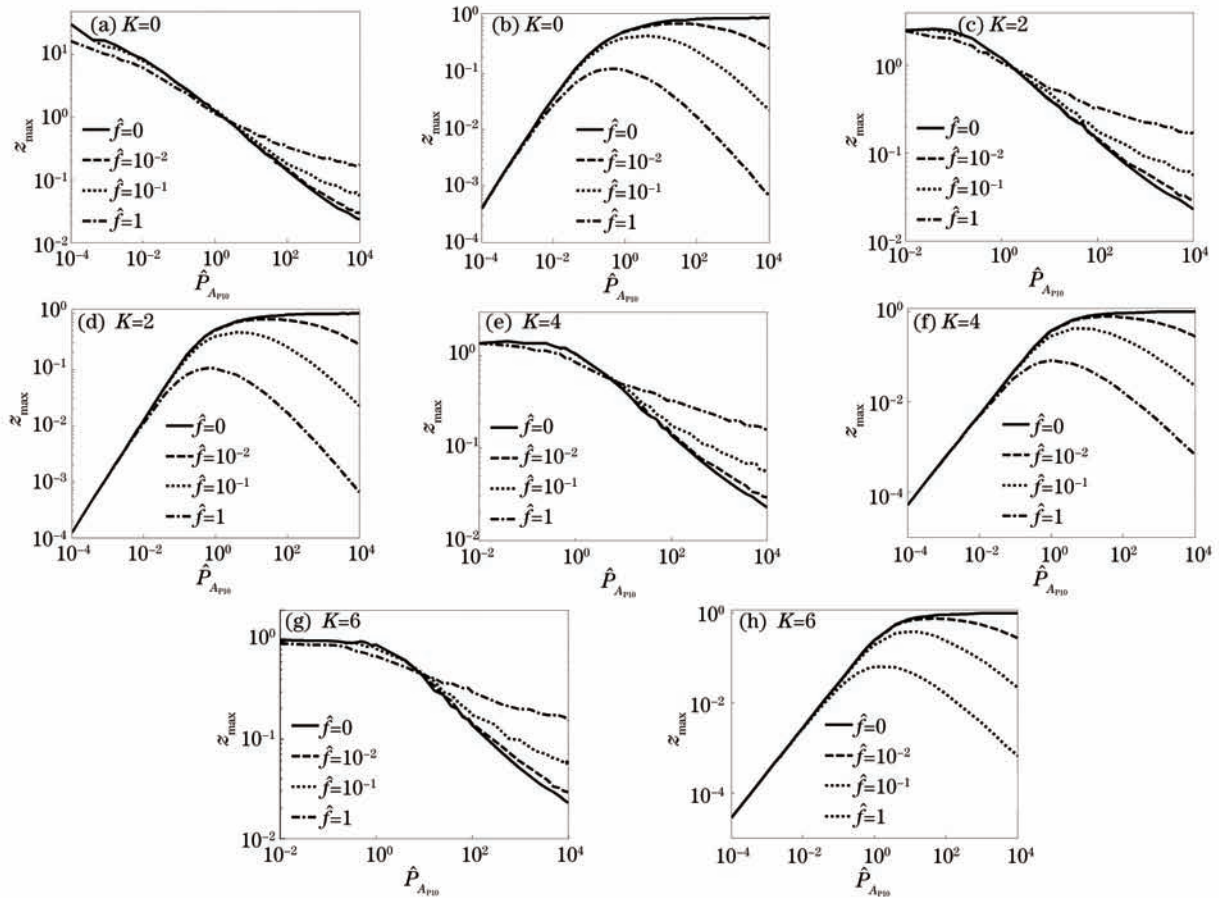


图2 相位匹配和相位失配情况下,双光子吸收效应对差频产生THz波的影响示意图

Fig.2 Charts for phase-matched DFG in the presence of two-photon absorption for both phase-matched and phase-mismatched situations

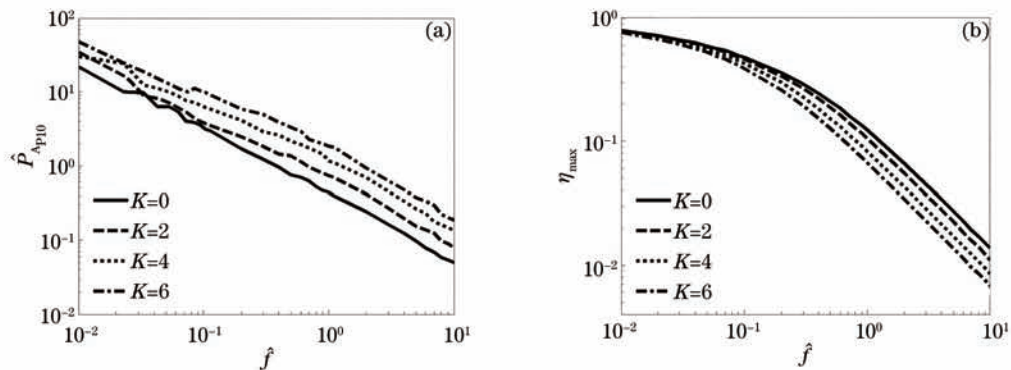


图3 最大转化效率及相应的抽运功率随双光子吸收系数的变化示意图

Fig.3 Change of maximum conversion efficiency and corresponding optimum conversion power with 2PA coefficient

3.2 三光子吸收的影响分析

差频过程中抽运光与信号光有6种三光子吸收的情形,如图4所示。与双光子吸收类似,考虑三光子吸收效应,对方程组(1)进行修正,修正项^[29]为

$$\begin{cases} \alpha_{3PA_{i_{p_2}}} = -\frac{1}{2}(\hat{g}_{A_{p_2}A_{p_2}A_{p_2}}|\hat{A}_{p_2}|^4 + 6\hat{g}_{A_{p_2}A_{p_2}A_{p_1}}|\hat{A}_{p_2}|^2|\hat{A}_{p_1}|^2 + 3\hat{g}_{A_{p_2}A_{p_1}A_{p_1}}|\hat{A}_{p_1}|^4)\hat{A}_{p_2} \\ \alpha_{3PA_{i_{p_1}}} = -\frac{1}{2}(\hat{g}_{A_{p_1}A_{p_1}A_{p_1}}|\hat{A}_{p_1}|^4 + 6\hat{g}_{A_{p_1}A_{p_1}A_{p_2}}|\hat{A}_{p_1}|^2|\hat{A}_{p_2}|^2 + 3\hat{g}_{A_{p_1}A_{p_2}A_{p_2}}|\hat{A}_{p_2}|^4)\hat{A}_{p_1} \end{cases} \quad (3)$$

其中, $\hat{g}_{pqr} \equiv \bar{P}_q \bar{P}_r / S_{pqr}^2 \times g_p / \alpha$ 是无量纲的3PA系数, $\bar{P}_p \equiv \hbar \omega_p / F$ 为参考功率, g_p 是频率为 ω_p 时的三光子吸收系数; $S_{pqr} \equiv (\langle e_p | e_p \rangle \langle e_q | e_q \rangle \langle e_r | e_r \rangle / \langle e_p e_q e_r | e_p e_q e_r \rangle)^{1/2}$ 是3PA的有效面积。假定差频过程中六种三光子吸收情形对应的有效作用面积也近似相等,并且 $\omega_{p_1} \approx \omega_{p_2}$,所以对所有的p、q和r的组合 $\hat{g}_{pqr} = \hat{g}$ 。在不同抽运光子通量,即标准功率 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 下,求解了修正后的耦合波方程组,并计算了相位匹配和相位失配情况下晶体的最佳作用长度和THz波的最大量子转化效率,如图5所示。计算中取抽运光与信号光的光子通量相等。

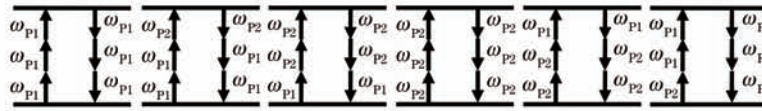


图4 三光子吸收示意图

Fig.4 Transition diagrams of 3PA

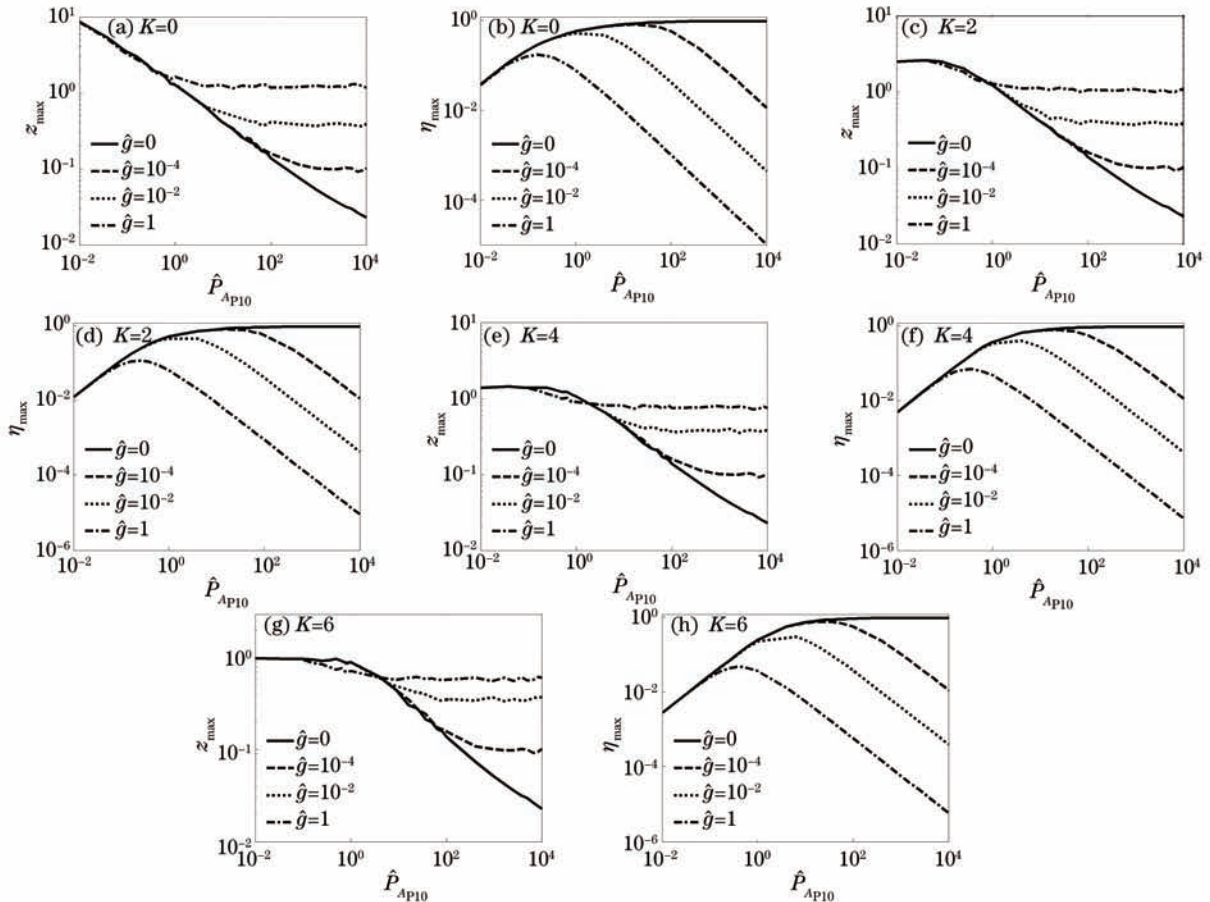


图5 相位匹配和相位失配情况下,三光子吸收效应对差频产生THz波的影响示意图

Fig.5 Charts for phase-matched DFG in the presence of three-photon absorption for both phase-matched and phase-mismatched situations

图5(a)为相位匹配的情况下最佳作用长度(Z_{max})随抽运功率 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 的变化示意图。从图中可知,当 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 值较低时,不同 \hat{g} 值的情况下, Z_{max} 的值基本相同,当 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 值较高时, Z_{max} 随着 \hat{g} 的增加而增大。图5(b)为

相位匹配的情况下最大量子转化效率 η_{\max} 随抽运功率 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 的变化示意图。当 $\hat{g}=0$ 时, η_{\max} 随 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 的增大而增大, 最终达到最大值; 当 $\hat{g} \neq 0$ 时, 也就是存在三光子吸收的情况下, η_{\max} 到达某 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 值所对应的最大值之后开始减小。图 5(c)~(h) 为相位失配量分别为 $K=2$ 、 $K=4$ 和 $K=6$ 的情况下 Z_{\max} 与 η_{\max} 随抽运功率 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 的变化。图(5)中可以看出, 当 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 值较低时, Z_{\max} 和 η_{\max} 随着相位失配量的增大而减小; 当 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 值较高时, Z_{\max} 和 η_{\max} 的值与相位匹配情况下基本相同。在抽运光功率较低时, 晶体的最佳作用长度与 THz 的最大转化效率随着相位失配量的增加而减小, 但三光子吸收效应的影响不明显。与双光子类似, 在抽运光功率较高时, 三光子吸收效应使晶体的最佳作用长度变长, 降低了 THz 的最大转化效率, 相位失配时三光子吸收对差频的影响与相位匹配类似。

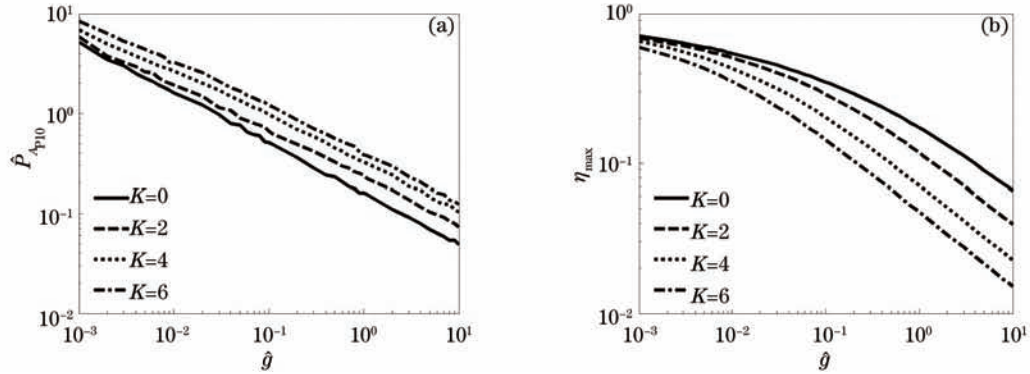


图 6 最大量子转化效率及相应的抽运功率随三光子吸收系数的变化示意图

Fig.6 Change of maximum conversion efficiency and corresponding optimum conversion power with 3PA coefficient

图 6 是相位匹配与失配情况下 THz 波的最大量子转化效率 η_{\max} 及相应的抽运功率 $\hat{P}_{A_{p10}}$ 随三光子吸收系数 \hat{g} 的变化图。由图可知, $\hat{P}_{A_{p10}}$ 的值随着 \hat{g} 值的增加而减小, 随着相位失配量 K 的增加而增大; η_{\max} 随着 \hat{g} 值的增加而减小, 同时随着相位失配量的增加而减小。这表明, 与相位匹配情况相比, 相位失配使最大转化效率对应的抽运光功率增加, 而最大转化效率下降。当三光子吸收效应强烈时, 会严重影响差频转换所能达到的最大转换效率。

4 应用和讨论

Tochitsky 等^[14]报道了利用双光束 TEA CO₂ 激光器发出的峰值功率为 6 MW 的纳秒光脉冲在 GaAs 晶体中差频产生峰值功率为 2 kW 波长为 260 μm (1.15 THz) THz 波辐射的实验。实验中, GaAs 晶体的长度是 2.7 cm ($Z \approx 2.7 < Z_{\max} = 8.5$), 在相位匹配条件下, 他们实现 THz 波辐射的量子转化效率为 0.82%, 这远低于量子转化效率极限。运用以上理论模型, 我们分析了该实验差频过程中的多光子吸收效应的影响。实验中, 抽运光与信号光的波长分别为 10.3 μm 与 10.6 μm , 大于双光子吸收效应的波长上限, 所以在分析中只考虑三光子吸收效应的影响^[30]。理论计算中, 把抽运光与信号光近似为高斯光束, 并以半功率点处的光斑尺寸计算有效面积。根据文中提供的实验数据, 计算得到, $R=1$, $\bar{P}_{p1} \approx \bar{P}_{p2} \approx 1.34 \text{ GW}$, $\bar{I}_{p1} \approx \bar{I}_{p2} \approx 24 \text{ TW}/\text{m}^2$, 峰值功率密度为 21 MW/cm², 从而 $\hat{P}_{p10} \approx 4.5 \times 10^{-3}$ 。又由于 $g_{p1} = g_{p2} = 0.06 \text{ m}^3/\text{TW}^2$ ^[29,22], THz 吸收系数 $\alpha = 1 \text{ cm}^{-1}$, 可以算出 $\hat{g} = 0.36$ 。考虑三光子吸收效应, 计算得到 THz 波辐射的量子转化效率为 0.98%, 该计算结果与不考虑三光子吸收效应的计算结果基本相同。实验结果比该计算结果低 0.16%, 这在实验不确定度允许的范围。因此可以认为, 三光子吸收效应在此实验条件下没有对转化效率产生影响。该抽运功率下, 相位失配为 $K=2$ 、 $K=4$ 、 $K=6$ 时, 量子转化效率分别为 5.5×10^{-3} 、 7.0×10^{-4} 、 5.8×10^{-4} , 可见相位失配降低了量子转化效率。

该实验中, 如果以 336 MW 峰值功率的抽运光入射, 相应的峰值功率密度为 1.2 GW/cm², 在晶体最佳作用长度为 $Z=2.39$ (2.39 cm) 时, 考虑三光子吸收效应, THz 波辐射的量子转化效率达到最佳为 24.4%。而不考虑三光子吸收效应, THz 波辐射的最佳量子转化效率将达到 35.8%, 三光子吸收效应降低了 11.4% 的量子转化效率, 与上述峰值功率为 6 MW 的实验相比, 三光子吸收效应显著, 这说明三光子吸收效应的影响随着抽

运功率的增大而增大。该抽运功率下,相位失配量为 $K=2$ 、 $K=4$ 、 $K=6$ 时,量子转化效率分别为 15.4%、2.6%、0.9%,这说明量子转化效率随着相位失配量增加而减小。

根据实验中的抽运光和信号光的频率、光束半径以及三光子吸收系数,可以得到不同相位失配量时的所达到的最大量子转化效率。当 $K=2$ 时,抽运峰值功率为 513 MW,最佳作用长度为 1.64 cm,可达到最大量子转化效率 18.3%;当 $K=4$ 时,抽运峰值功率为 718 MW,最佳作用长度为 1.09 cm,可达到最大量子转化效率 11.6%;当 $K=6$ 时,抽运峰值功率为 885 MW,最佳作用长度为 0.76 cm,可达到最大量子转化效率 7.9%。由此可见相位失配减小了最佳作用长度,降低了最大量子转化效率。

根据 $\hat{g} \propto \alpha^3/\omega_r^2$, 输出 THz 波辐射的频率越高、THz 波的吸收系数 α 越小,三光子吸收系数就会越低,因此可以采用 THz 波吸收系数小的非线性材料 THz 波辐射来减小三光子吸收效应。Tochitsky 等^[15]报道了利用 CO₂ 激光器发出的峰值功率为 1500 MW(相应的峰值功率密度为 250 MW/cm²)的皮秒光脉冲在 GaAs 晶体中差频产生峰值功率为 2 MW 波长为 340 μm (0.897 THz) THz 波辐射的实验。实验中, GaAs 晶体的长度是 2.5 cm ($Z \approx 2.5 > Z_{\text{max}} = 1$), THz 吸收系数为 0.4 cm⁻¹, 三光子吸收系数为 $\hat{g} = 0.26$ ^[28,21]。在相位匹配条件下,他们实现 THz 波辐射的量子转化效率为 4.28%。考虑三光子吸收效应,计算得到 THz 波辐射的量子转化效率为 4.8%,实验结果比该计算结果低 0.52%。该计算结果与不考虑三光子吸收效应的计算结果基本相比,量子转化效率降低了 0.6%。这表明,三光子吸收系数依赖于 THz 吸收系数,当 THz 吸收系数较小时,三光子吸收系数也同时降低。此实验中虽然采用了很高峰值功率密度的抽运光,但三光子吸收效应并不强烈。声子吸收也影响到 THz 波的转化效率,可以通过冷却晶体降低声子吸收。该抽运功率下,相位失配量为 $K=2$ 、 $K=4$ 、 $K=6$ 时,量子转化效率分别为 4.5%、3.4%、2.2%,相位失配降低了量子转化效率。

Trubnick 等^[16]利用抽运峰值功率密度为 15 MW/cm², 波长分别为 10.3 μm 、10.6 μm 的抽运光,相位失配的情况下在 GaAs 晶体中差频产生了 9 W 的 THz 波。实验的量子转化为 2×10^{-5} , 根据实验条件运用本模型计算得到的转化效率为 2.4×10^{-5} , 两者相吻合。

迄今所报道的接近量子转化效率极限的唯一一个实验^[9]中,采用峰值功率为 300 kW(相应的峰值功率密度为 16.8 MW/cm²)的抽运光与 400 kW 的闲频光在 4.7 cm 长的 GaSe 晶体中产生了峰值功率为 389 W 频率为 1.48 THz(THz 吸收系数为 $\alpha \approx 0.2 \text{ cm}^{-1}$)的 THz 波辐射,量子转化效率高达 39.2%。Cherchi 等^[22]对该实验中双光子吸收效应进行了分析,结果表明双光子吸收效应降低了 3% 的量子转化效率。根据理论研究,如果入射的抽运光和闲频光峰值功率均为 5 MW,相应的峰值功率密度为 280 MW/cm²,在晶体最佳作用长度为 $Z=0.14$ (0.7 cm)时,考虑双光子吸收效应,THz 波辐射的量子转化效率达到为 75.6%。而不考虑双光子吸收效应,THz 波辐射的量子转化效率将达到 92%,双光子吸收效应降低了 16.4% 的量子转化效率,与上述实验相比,由于抽运光功率的增加,双光子吸收效应更加显著地降低了 THz 波辐射的量子转化效率。在相位失配为 $K=2$ 、 $K=4$ 、 $K=6$ 的情况下,量子转化效率分别为 75.3%、74.8%、74.2%,这说明实验中相位失配的影响不大。对于双光子吸收效应, $\hat{f} \propto \alpha/\omega_r$, 当产生高于 6 THz 的 THz 波波时, GaSe 晶体对应的 THz 吸收系数为 $\alpha \approx 10 \text{ cm}^{-1}$, 双光子吸收效应就变得更加显著。因此,输出频率较高的 THz 波辐射时对应较小的双光子吸收效应。

5 结 论

理论分析了双光子和三光子吸收对差频产生 THz 波的影响,求解了包含多光子吸收的耦合方程组。在不同抽运功率下,计算了相位匹配和相位失配情况下晶体的最佳作用长度和 THz 的最大转化效率。计算结果表明,抽运功率较低时,多光子吸收对差频产生 THz 的影响可以忽略,差频抽运功率较高时,相位匹配与相位失配情况下,双光子和三光子吸收效应都增加了晶体的最佳作用长度,降低了 THz 的最大转化效率。当多光子效应强烈时,会严重影响差频输出的 THz 功率。论文还将研究结果与已发表文献中的结果作对比,讨论了多光子吸收对差频产生 THz 波的影响,并根据材料吸收系数与双光子和三光子吸收系数的关系,研究了降低多光子吸收效应的方法。研究结果为差频产生 THz 波辐射的实验研究提供深入和全面的理论基础。

参考文献

- 1 Pickett H M. THz spectroscopy of the atmosphere [C]. SPIE, 1999, 3617: 2-6.
- 2 O'Shea P G, Freund H P. Free-electron lasers: status and applications [J]. Science, 2001, 292(5523): 1853-1858.
- 3 Xu Lin, Zhang Xicheng, Auston David H. Terahertz beam generation by femtosecond optical pulses in electro-optic materials [J]. Appl Phys Lett, 1992, 61(15): 1784-1786.
- 4 Siegel P H. Terahertz technology in biology and medicine [J]. Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on, 2004, 52(10): 2438-2447.
- 5 Zhang Xin, Zhao Yuanmeng, Deng Chao, *et al.*. Study on the image reconstruction algorithm for passive human terahertz imaging system [J]. Chinese J Lasers, 2011, 38(s1): s111009.
张馨, 赵源萌, 邓朝, 等. 被动式人体太赫兹成像系统的图像重构算法研究[J]. 中国激光, 2011, 38(s1): s111009.
- 6 Zhu Dechong, Zhang Liangliang, Zhao Yaqin, *et al.*. Terahertz broadband spectroscopic investigations of amino acid [J]. Chinese J Lasers, 2011, 38(s1): s111008.
祝德充, 张亮亮, 赵亚芹, 等. 氨基酸的超宽带太赫兹光谱[J]. 中国激光, 2011, 38(s1): s111008.
- 7 Li Qi, Ding Shenghui, Li Yunda, *et al.*. Advances in research on THz digital holography imaging [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2012, 49(5): 050006.
李琦, 丁胜辉, 李运达, 等. 太赫兹数字全息成像的研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2012, 49(5): 050006.
- 8 Mu X, Ding Y J, Zotova I B. Exploring fundamental limits to terahertz generation in electrooptic materials: From bulk to nanolayers [J]. Laser Physics, 2008, 18(5): 530-546.
- 9 Ding Y J. High-power tunable terahertz sources based on parametric processes and applications [J]. Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of, 2007, 13(3): 705-720.
- 10 Gaivoronsky V Y, Nazarov M M, Sapozhnikov D A, *et al.*. Competition between linear and nonlinear processes during generation of pulsed terahertz radiation in a ZnTe crystal [J]. Quantum Electronics, 2007, 35(5): 407.
- 11 Xing Q, Lang L, Tian Z, *et al.*. The effect of two-photon absorption and optical excitation area on the generation of THz radiation [J]. Optics Communications, 2006, 267(2): 422-426.
- 12 Carrig T J, Rodriguez G, Clement T S, *et al.*. Scaling of terahertz radiation via optical rectification in electro-optic crystals [J]. Appl Phys Lett, 1995, 66(2): 121-123.
- 13 Cherchi M, Bivona S, Cino A C, *et al.*. Universal charts for optical difference frequency generation in the terahertz domain [J]. Quantum Electronics, IEEE Journal of, 2010, 46(6): 1009-1013.
- 14 Tochitsky S Y, Sung C, Trubnick S E, *et al.*. High-power tunable, 0.5-3 THz radiation source based on nonlinear difference frequency mixing of CO₂ laser lines [J]. J Opt Soc Am B, 2007, 24(9): 2509-2516.
- 15 Tochitsky S Y, Ralph J E, Sung C, *et al.*. Generation of megawatt-power terahertz pulses by noncollinear difference-frequency mixing in GaAs [J]. J Appl Phys, 2005, 98(2): 026101.
- 16 Trubnick S E, Tochitsky S Y, Joshi C. Fabrication and characterization of Teflon-bonded periodic GaAs structures for THz generation [J]. Opt Express, 2009, 17(4): 2385-2391.
- 17 Wang Bingbing, Huang Jingguo, Lu Jinxing, *et al.*. Terahertz wave sources based on difference frequency generation and optical parametric processes [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2011, 48(5): 051901.
王兵兵, 黄敬国, 陆金星, 等. 基于非线性光学差频及参量效应的太赫兹源[J]. 激光与光电子学进展, 2011, 48(5): 051901.
- 18 Zhong Kai, Yao Jianquan, Xu Degang, *et al.*. Theoretical research on cascaded difference frequency generation of terahertz radiation [J]. Acta Physica Sinica, 2011, 60(3): 034210.
钟凯, 姚建铨, 徐德刚, 等. 级联差频产生太赫兹辐射的理论研究[J]. 物理学报, 2011, 60(3): 034210.
- 19 Liu Huan, Xu Degang, Yao Jianquan. Theoretical study of tunable terahertz radiation based on difference-frequency generation in GaS and ZnGeP₂ crystals [J]. Acta Physica Sinica, 2008, 57(9): 5662-5669.
刘欢, 徐德刚, 姚建铨. 基于GaSe和ZnGeP₂晶体差频产生可调谐太赫兹辐射的理论研究[J]. 物理学报, 2008, 57(9): 5662-5669.
- 20 Sun Bo, Liu Jinsong, Li Enbang, *et al.*. Investigation of pump-wavelength dependence of terahertz-wave parametric oscillator based on LiNbO₃ [J]. Chinese Physics B, 2009, 18(7): 2846.
- 21 Lu Jinxing, Huang Zhiming, Huang Jingguo, *et al.*. Analysis of the effect of phase-mismatch and material absorption on the terahertz-wave generation from GaSe [J]. Acta Physica Sinica, 2011, 60(2): 298-304.

- 陆金星, 黄志明, 黄敬国, 等. 相位失配与材料吸收对利用 GaSe 差频产生太赫兹波功率影响的研究[J]. 物理学报, 2011, 60(2): 298-304.
- 22 Cherchi M, Bivona S, Cino A C, *et al.*. The role of nonlinear optical absorption in narrowband difference-frequency terahertz-wave generation [J]. J Opt Soc Am B, 2010, 27(2): 222-227.
- 23 Boyd R W. Nonlinear Optics [M]. Academic Press, 2002.
- 24 Yariv A. Coupled-mode theory for guided-wave optics [J]. Quantum Electronics, IEEE Journal of, 1973, 9(9): 919-933.
- 25 Cherchi M, Taormina A, Busacca A C, *et al.*. Exploiting the optical quadratic nonlinearity of zinc-blende semiconductors for guided-wave terahertz generation: a material comparison [J]. Quantum Electronics, IEEE Journal of, 2010, 46(3): 368-376.
- 26 Henry C H, Garrett C G B. Theory of parametric gain near a lattice resonance[J]. Phys Rev, 1968, 171(3): 1058-1064.
- 27 Morris J R, Shen Y R. Theory of far-infrared generation by optical mixing [J]. Phys Rev A, 1977, 15(3): 1143-1156.
- 28 Vodopyanov K L. Optical generation of narrow-band terahertz packets in periodically-inverted electro-optic crystals: conversion efficiency and optimal laser pulse format [J]. Opt Express, 2006, 14(6): 2263-2276.
- 29 Cherchi M, Stivala S, Pasquazi A, *et al.*. Second-harmonic generation in surface periodically poled lithium niobate waveguides: on the role of multiphoton absorption[J]. Applied Physics B: Lasers and Optics, 2008, 93(2-3): 559-565.
- 30 Hurlbut W C, Lee Y S, Vodopyanov K L, *et al.*. Multiphoton absorption and nonlinear refraction of GaAs in the mid-infrared [J]. Opt Lett, 2007, 32(6): 668-670.