

太赫兹参量振荡器研究进展

李惟帆¹ 郭宝山¹ 史伟^{1,2}

¹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, 光电信息技术科学教育部重点实验室, 天津 300072

²亚利桑那大学光学科学中心, 美国亚利桑那州 85747

摘要 太赫兹(THz)波以其光谱和传输性能等方面的独特特性在基础学科研究、医学成像和无损检测等多领域具有重要的应用前景,其科学研究战略意义重大。根据THz波参量振荡器(TPO)的结构,主要从产生THz波常用的非线性晶体,内腔、外腔及腔增强结构,THz波输出耦合方式,浅表面输出结构,抽运光参数对TPO的影响和种子注入技术几个方面对国内外THz参量振荡器的研究进展进行回顾。随着新材料和新结构的研究,TPO将会在越来越多的领域中发挥作用。

关键词 光谱学; 太赫兹参量振荡; 铌酸锂晶体; 输出耦合; 谐振腔结构; 种子注入技术

中图分类号 O441.4 文献标识码 A doi: 10.3788/LOP51.090005

Progress of Terahertz Parametric Oscillator

Li Weifan¹ Guo Baoshan¹ Shi Wei^{1,2}

¹Key Laboratory of Opto-Electric Information Science and Technology, Ministry of Education, Institute of Laser and Optoelectronics, College of Precision Instrument and Opto-Electronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China

²College of Optical Sciences, University of Arizona, Arizona 85747, USA

Abstract Terahertz (THz)-wave has brought huge application prospect to the study of basic disciplines, medical imaging and nondestructive testing, for its unique features in spectrum and transmission performance, and it has significant scientific strategic importance. The development process of THz-wave parametric oscillator (TPO) is mainly summarized from several aspects: nonlinear crystals used in THz generation, resonator structures including external cavity, intra-cavity and pump-enhanced cavity, THz wave output coupling schemes, surface-emitted structure, pump light parameters and injection seeding. With the development of new materials and new structures, TPO will play an important role in more fields.

Key words spectroscopy; terahertz parametric oscillator; LiNbO₃ crystals; output coupler; resonator structure; injection seeding

OCIS codes 040.2235; 190.4410; 140.4780; 140.3580

1 引言

太赫兹(THz)波段介于红外与微波波段之间,是频率在0.1~10 THz(1 THz=10¹² Hz)、波长在0.03~3 mm的电磁辐射。由于物质在THz波段的光谱有着丰富的物理化学性质,THz波在无损成像、环境监测、卫星通信和军事作战等许多领域^[1-4]被寄予厚望,具有巨大的研究价值和发展空间。

目前光学方法产生THz波的方法主要有3种。第一种方法是基于红外光抽运产生THz辐射,就是利用CO₂激光器输出的远红外光抽运一个充有甲烷、氰化氢或是甲醇等物质的低气压腔。由于这些气体分子转动能级间的跃迁频率处于THz波段范围,所以可以形成THz波受激辐射。整个系统包括一个可调谐的CO₂激光器作为抽运源,一个频率参考和锁定装置及一个充气低压THz波激发腔。该方法成功实现产品商业化,并被美国国家航天局应用于卫星大气观测^[5]。第二种方法是利用超短脉冲产生的宽带THz辐射。其中

收稿日期: 2014-03-03; 收到修改稿日期: 2014-04-20; 网络出版日期: 2014-08-19

基金项目: 国家973计划(2014CB3399802)、国家自然科学基金(61275102,61335013)、教育部博士点基金(20130032110051)

作者简介: 李惟帆(1990—),男,硕士研究生,主要从事参量振荡THz源方面的研究。E-mail: liweifan@tju.edu.cn

导师简介: 史伟(1964—),男,教授,博士生导师,主要从事高功率光纤激光器和差频THz波源等方面的研究。

E-mail: shiwei@tju.edu.cn(通信联系人)

基于光电导和光整流机制的技术最为成熟。简单来说,光电导方法就是使用高速光电导材料作为瞬态电流源,向外辐射 THz 波;光整流则是利用电光晶体作为非线性介质,使超短脉冲进行二阶或高阶非线性光学过程来产生 THz 波。当然,把超短脉冲在空气中聚焦,形成等离子体辐射 THz 波的技术在近些年也引起了人们的广泛关注。第三种方法是利用非线性频率变换过程产生 THz 辐射,典型的是差频(DFG)和参量振荡方法。差频方法产生 THz 辐射的最大优点是没有阈值,结构紧凑,THz 波频率调谐范围大^[6]。不过由于差频方法原理的限制,需要两个抽运光源来产生功率较高,波长接近的抽运光和斯托克斯光,其中一个光源还要求连续可调。相比之下 THz 波参量振荡方法只需要一个固定波长的抽运源,结构简单,易于调谐,并且非线性转换效率比差频方法高几个数量级。基于晶格振动模理论的 THz 波参量振荡器(TPO)是一种调谐简单、室温工作、高效产生相干 THz 波的重要辐射源^[7]。TPO 一般由以下四部分组成:抽运光源、光学谐振腔、非线性晶体、相位匹配和调谐装置。近几年 TPO 研究飞速发展,经优化后各具特色的结构为光学参量振荡方法产生 THz 波以及提高转换效率不断提供新思路。本文主要从 TPO 的结构入手,依次从非线性晶体、谐振腔结构、输出耦合方式、抽运光参数和种子注入技术五方面回顾 THz 波参量振荡技术的发展历程。

2 光学参量振荡产生太赫兹辐射

2.1 非线性晶体材料

非线性晶体材料的非线性系数、吸收系数和损伤阈值等参数对 THz 波的产生有着重要影响。常用于产生 THz 波的非线性晶体有:GaAs、GaP 等闪锌矿晶格结构晶体^[8],LiNbO₃、LiTaO₃晶体,ZnGeP₂晶体^[9],GaSe 等半导体晶体^[10]以及二乙氨基三氟化硫(DAST)等有机非线性晶体^[11]等。闪锌矿晶格结构的晶体主要来源于 III-V 和 II-IV 族系,光学各向同性,具有较高的光损伤阈值和非线性系数,可以高纯度、大体积生长,具有较窄的剩余辐射带,减小了晶体在远红外波段对 THz 波的强吸收,为利用剩余辐射带色散补偿的方法实现相位匹配、差频相位匹配产生 THz 提供了可能^[12]。ZnGeP₂晶体具有非线性系数大,损伤阈值高(10 J/cm²)、透明范围广(0.74~12 μm)、相位匹配范围宽、机械特性和热导率良好、在 THz 波波段吸收系数小等特点,但也存在着生长、加工以及后期处理较为复杂,价格昂贵等缺点^[13]。GaSe 晶体具有相对较大的电光系数、高损伤阈值(对脉冲宽度为 10 ns 的 1.064 μm 激光,损伤阈值为 30 MW/cm²;对连续的 10.6 μm 激光,损伤阈值为 0.5 MW/cm²)、较大的透光范围(0.62~20 μm),低吸收系数(0.25 cm⁻¹@1.064 μm),大非线性系数($d_{22}=54$ pm/V),是在目前已知的各种 THz 波差频晶体中吸收系数最小的晶体^[10]。有机 DAST 晶体具有较低的介电常数和低非线性系数(d_{11} 比 LiNbO₃晶体最大非线性系数 d_{33} 大 10 倍),适合差频以及超短脉冲宽光谱 THz 的产生和探测。

LiNbO₃晶体是负单轴晶体,具有拉曼和红外活性,可以基于其最低 A₁对称光学软模在长波长、小波矢处的可调谐受激电磁耦合子散射过程产生 THz 波。电磁耦合子是当一束强激光束传播经过一个非线性晶体,光子和声子的横波场被耦合,表现为新的混合光子——声子态^[14]。电磁耦合子色散关系曲线如图 1 所示^[14]。在 Pantell 和 Puthoff 等利用 LiNbO₃晶体产生远红外辐射研究工作的启发下^[15-17],Kawase 等^[18]在 1996 年首次将 LiNbO₃晶体用于 TPO 实验中,并得到了比较理想的结果。之后由于大非线性系数(光波长为 1.064 μm 时 $d_{33}=25.2$ pm/V)和宽透光范围(0.4~5 μm),LiNbO₃晶体被广泛应用于 TPO 的研究之中。

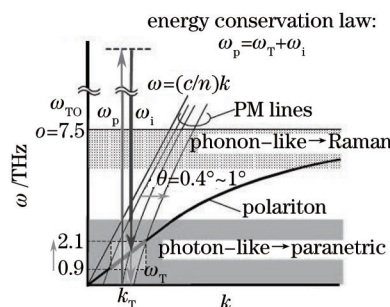


图 1 电磁耦合子的散射关系曲线图

Fig.1 Dispersion relation of polariton

美中不足的是 LiNbO₃晶体有着显著的光折变效应,导致在 TPO 研究中,抽运阈值、输出能量、光束质量

和增益等方面都不理想。光折变效应是贝尔实验室的 Ashkin 等^[19]在 20 世纪 60 年代首先发现的。他们在利用 LiNbO₃ 和 LiTaO₃ 晶体进行光倍频实验时,意外发现强光辐照会引起折射率的变化,从而严重影响相位匹配条件。同时 LiNbO₃ 晶体的抗光损伤能力也很低,也就是在较弱的光强下即可产生很强的光折变效应而引起散射。为了解决这一不利因素,人们开始通过掺杂的方法来研究改进 LiNbO₃ 晶体的性质。1980 年南开大学物理系光伤组和西南技术物理所合作在南开大学物理实验室发现,当 LiNbO₃ 晶体中所掺镁的摩尔分数达到 5% 时,晶体的抗光折变能力可以提高两个数量级以上^[20]。这一效应在 SPIE 会议上报道后,引起了国内外学者的广泛关注。自此,非线性系数大,抗光损伤能力强的 5% MgO:LiNbO₃ 晶体替代了普通 LiNbO₃ 晶体,被大量用于 TPO 实验研究,得到了功率更高、光束质量更好的 THz 波输出。金婵等^[21]进行了掺镁 LiNbO₃ 晶体损伤阈值随浓度变化的实验。实验采用直接观察透射光斑法测试晶体光损伤阈值,光源为氩离子激光器($\lambda = 488.0 \text{ nm}$),激光束的功率用分光镜连续调节。测得 LiNbO₃ 晶体的光损伤阈值为 $1.06 \times 10^2 \text{ W/cm}^2$, 4% 和 5% LiNbO₃ 晶体的光损伤阈值分别为 $4.2 \times 10^2 \text{ W/cm}^2$ 和 $9.6 \times 10^4 \text{ W/cm}^2$ 。

除了掺杂 MgO 的 LiNbO₃ 晶体,周期性极化铌酸锂(PPLN)晶体也在准相位匹配产生 THz 波的研究中显示出其优越性。准相位匹配技术是一种介于相位匹配和失配之间的匹配方式,最早在 1962 年由诺贝尔物理学奖获得者 N. Blembergen 提出^[22],具有非线性转换效率高的特点。其原理是将非线性晶体制成周期性极化反转的结构,允许在波矢方向有一定的相位失配,但没有扩大的趋势。在准相位匹配产生 THz 波的研究中,利用 PPLN 实现抽运光、斯托克斯光和 THz 波的准共线传播,可以有效解决三波非共线相互作用长度低而导致的能量转换效率低问题,极大提高耦合效率,增强 THz 波的输出^[23]。不过由于 PPLN 晶体制作出来后极化周期固定,当输出方向相同时,不同频率的 THz 波对应不同的极化周期,所以利用准相位匹配技术实现调谐输出存在一定困难。

除了晶体本身的性质,外界因素如温度也会使晶体参数发生较大改变从而影响 THz 波的输出。LiNbO₃ 晶体对温度变化非常敏感,温度变化会导致晶体折射率的变化。另一方面,晶体内部由于不同的热膨胀系数产生不同应力,晶体体积膨胀或收缩,进一步影响晶体的光学性质。典型的例子就是 Shikata 等^[24]于 1999 年首次将 LiNbO₃ 晶体置于 78 K 的低温环境下实验,晶体吸收系数显著降低,在抽运能量为 11.4 mJ 时,最大 THz 波输出单脉冲能量约为 50 pJ,峰值功率为 7.2 mW,相比常温情况增大了 125 倍,阈值降为原来的 32%。通过改变晶体的形状调整光路,可以增加有效相干长度和减少晶体对 THz 波的吸收,压缩结构体积。这一点在之后的部分会有介绍。

2.2 输出耦合

LiNbO₃ 晶体在 THz 波频率范围具有较大的吸收系数,例如频率为 1.5 THz 的 THz 波在 MgO:LiNbO₃ 晶体中每经过 0.5 mm,其能量就会损失 91%^[25]。而 THz 波在 LiNbO₃ 晶体与空气界面的全反射角比较小,导致大部分 THz 波在晶体出射面处被反射回晶体内部,经过多次全反射最终被晶体吸收,严重影响了 THz 波的转换效率。为了减少晶体吸收损耗,应该减少 THz 波在非线性晶体中的传播距离。

事实上用于解决 THz 波全反射问题的切角耦合技术早在 1969 年就已经被人们用于光传播的研究^[15-17]。其原理非常简单,即在晶体的输出端切下一个角,使产生的 THz 波能够基本以垂直于晶体切面的方向输出,提高输出耦合效率^[26],如图 2(a)所示。当然人们并不满足于利用这种方法所得到的 THz 波输出。以此为契机 Kawase 等^[27]进行了大量研究寻找更有效的耦合输出方式,并成功提出了几种关于 THz 波耦合输出的新方案,包括光栅耦合输出,单 Si 棱镜耦合输出和 Si 棱镜阵列耦合输出。图 2(b)为光栅耦合输出方法示意图。通过改变光栅深度,可以得到不同的耦合系数,在相同的实验条件下,相比切角耦合方法效率可以高出几百甚至上千倍^[18]。不过由于非共线相位匹配自身的特点以及光栅的色散特性,光栅耦合方法输出的 THz 波方向性较差,在调谐输出波长时方向变化尤为明显。而 Si 棱镜耦合方式如图 2(c)所示,即使在 THz 波波长调谐时也可以得到方向几乎不变的 THz 波输出^[27]。Kawase 等^[28]的实验表明,在以 $\lambda_T = 200 \text{ }\mu\text{m}$ 为零角度参考,波长在 150~300 μm 变化时,切角耦合输出方式由于 LiNbO₃ 晶体较大的折射率,角度变化了 4°;光栅耦合输出方式由于布拉格条件,角度变化高达 100°;而 Si 棱镜耦合输出方式只有 0.03°,几乎沿着同一方向输出。值得注意的是在使用 Si 棱镜时,棱镜底部和晶体表面需要特殊处理抛光来减小两者之间的耦合区域,以防止抽运光散射激发 Si 棱镜底部自由载流子导致对 THz 波的吸收^[29]。使用多个 Si 棱镜组成 Si 棱镜阵列

时,如图2(d)所示,耦合输出的面积得到相应倍数的增大。通常选7个Si棱镜进行阵列耦合输出时,耦合效率是用单Si棱镜的7倍。但棱镜个数不是越多越好,多个小棱镜将使得衍射效应增强,光束质量变差。随着抽运光与LiNbO₃晶体输出表面距离的减小,THz波的吸收损耗相应减小。

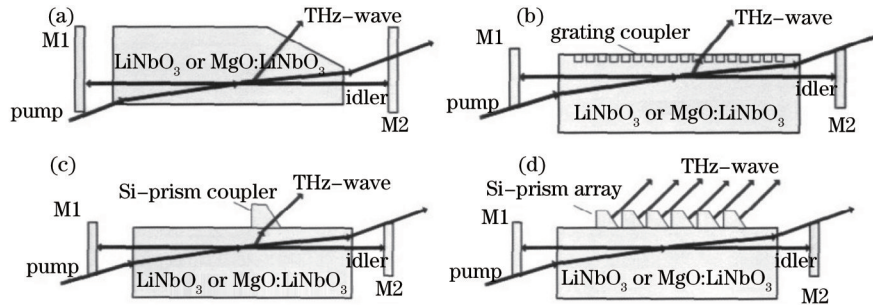


图2 THz波输出耦合方式。(a)切角;(b)光栅;(c)Si棱镜;(d)Si棱镜阵列

Fig.2 Schematic diagram of THz output coupling. (a) Angled surface; (b) grating; (c) Si-prism; (d) Si-prism array

特殊设计的Si棱镜虽然能有效地耦合输出THz波,但是THz波在产生与被耦合输出之间经受LiNbO₃晶体很大吸收损耗的问题依旧没有被解决,严重限制THz波转换效率的同时增大了TPO阈值。而且THz波经过Si棱镜后光束质量会受到衍射等效应的影响。采用浅表面出射结构来改进TPO装置可以有效解决晶体吸收、输出THz波波前不一致和衍射等问题^[30]。这种结构之前被用于利用PPLN晶体差频产生THz波的研究^[31]。在浅表面垂直出射结构TPO中,根据非共线相位匹配条件 $k_p = k_s + k_T$,以满足相位匹配条件的特殊角度切割晶体,使THz波垂直于晶体的表面出射。THz波产生最强的地方就在THz波的出射点,紧贴着LiNbO₃晶体的表面。这样THz波在LiNbO₃晶体中传播的距离相对于Si棱镜耦合方式几乎为零,输出能量会显著提高,且光束质量更好。图3所示为Ikari等^[30]利用多块MgO:LiNbO₃晶体实现的浅表面出射方式TPO。不过由于抽运光并非垂直入射,会在两块晶体接触面之间发生多次反射从而对晶体造成损伤,需要对晶体接触面进行特殊处理。使用一块大体积MgO:LiNbO₃晶体可以有效避免这个问题。近几年李忠洋等^[32-33]致力于浅表面出射结构TPO的研究。他们分别对使用两块大体积和一块不同形状的大体积MgO:LiNbO₃晶体的浅表面出射结构TPO进行了大量实验,实现了高功率可调谐的THz波输出,调谐范围为1.084~2.653 THz,最大输出THz平均功率在1.93 THz处为5.8 μW,抽运单脉冲能量为84 mJ,相应的能量转换效率为6.9×10⁻⁶。

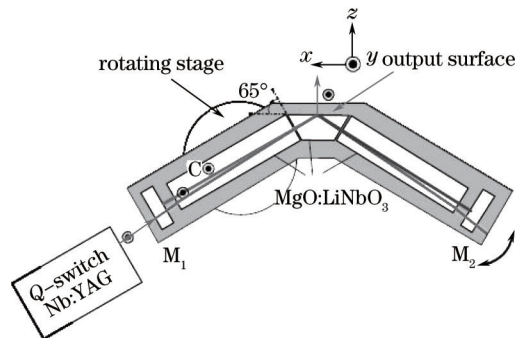


图3 Nd:YAG激光器抽运实现的浅表面出射方式TPO结构图

Fig.3 Schematic diagram of a Nd:YAG laser-pumped surface-emitted TPO

2.3 TPO腔结构

TPO按腔结构大致可以分为两类:外腔结构TPO和内腔结构TPO。典型的外腔抽运TPO如图4所示^[27],由Nd:YAG调Q脉冲激光器,一块集成Si棱镜阵列的MgO:LiNbO₃晶体和斯托克斯光谐振腔放置在旋转台上组成。简单来说,其原理是抽运光与LiNbO₃晶体中A₁晶格振动模相互作用产生电磁耦子,同时辐射出斯托克斯光。电磁耦子在低频条件下表现为THz频率的光子^[14],即产生THz波辐射。斯托克斯光在谐振腔中不断振荡被放大,THz波也相应成比例放大并被耦合输出。通过调整旋转台的角度可以实现不同的相位匹配角,满足不同的相位匹配条件,从而获得可调谐的THz波输出。图3所示的浅表面出射结构也是外腔结

构。目前为止外腔单谐振腔结构的 TPO 应用非常广泛, 因为该结构稳定性高, THz 波频率易于调谐。但它有一个明显缺点, 就是需要高功率激光器抽运以达到振荡阈值。

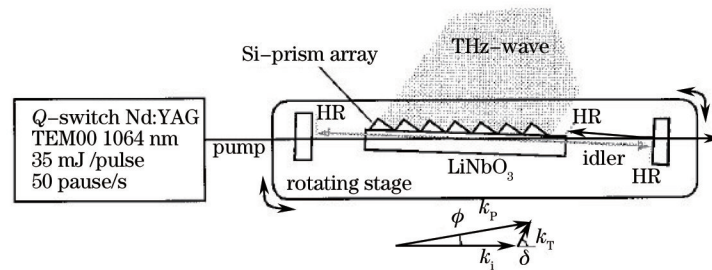


图4 典型的外腔 TPO 结构图

Fig.4 Schematic diagram of typical external cavity TPO

通过优化结构参数可以提高 THz 波的输出性能, 例如张显斌等^[34]将腔长由传统的 160 mm 缩短至 85 mm, 并在腔反射镜上镀高性能短波长滤光膜(SWPF), 显著降低 THz 波振荡阈值达 22.3%, 输出峰值能量提高了 170%, 并将 THz 频率调谐范围由 0.5~2.4 THz 提高到了 0.8~3.1 THz。王伟涛等^[35]利用浅表面出射结构, 对条状 MgO:LiNbO₃ 晶体进行了实验, 实验装置如图 5 所示。抽运光和斯托克斯光在 MgO:LiNbO₃ 晶体中以“Z”形线路全反射传播, THz 波由 A、B、C、D 和 E 五个点垂直出射。在相同的实验条件下, 该条状晶体结构 TPO 五个点的最大总输出能量是传统浅表面出射 TPO 输出能量的 3.56 倍, 通过改变入射角度可以得到 1.30~2.47 THz 的输出。

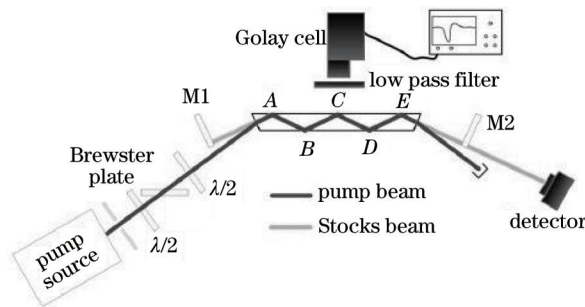


图5 条状晶体浅表面出射 TPO 结构图

Fig.5 Schematic diagram of surface-emitted TPO with the slab crystal

内腔 TPO 与外腔 TPO 的结构区别在于, 内腔 TPO 的增益介质直接放置在抽运光的谐振腔内, 抽运光在谐振腔内的功率会比输出的功率大很多, 所以增益介质会受到更高能流密度的抽运, 从而有效降低阈值, 提高能量转换效率。斯托克斯光有独立的谐振腔, 与抽运光谐振腔交叉放置, 在相位匹配时相互影响, 所以会在一定程度上增大 THz 输出调谐的难度^[36]。内腔结构 TPO 由 Edwards 等^[37]在 2006 年首先实现, 如图 6 所示。这种结构抽运光阈值能量小于 1 mJ, 降低了 TPO 的阈值。在 2 倍阈值处, THz 波的量子转换效率接近 50%。通过旋转 M3、M4 组成的谐振腔, 满足不同的相位匹配条件, 实现了频率范围 1.2~3.05 THz 的输出。天津大学姚建铨等^[38]对内腔 TPO 进行了大量研究。他们通过在侧面抽运的 Nd:YAG 调 Q 激光器腔内放置 MgO:LiNbO₃ 晶体形成内腔结构 TPO, 获得了频率调谐范围为 1.4~2.5 THz 的高功率 THz 波输出。浅表面出射结构用在内腔结构 TPO 实验中也得到了良好的结果。李忠洋等^[39]利用侧面抽运技术与一块大体积 MgO:LiNbO₃ 晶体组成的浅表出射 TPO 结构, 如图 7 所示, 有效降低了 THz 波的吸收和振荡阈值, 极大提高了抽运光到 THz 波的转换效率。

还有一种腔增强结构 TPO。这种结构实际上是外腔 TPO 的改进结构, 核心思想就是增加对抽运光的反射使之与斯托克斯光同时振荡, 减小 TPO 的抽运阈值。2009 年 Molter 等^[40]首次采用 PPLN 晶体和腔增强结构 TPO 实现了 1.5 THz 的脉冲输出。近几年 Takida 等^[41-42]一直致力于腔增强结构 TPO 的研究。图 8 所示为他们的最新研究成果, 腔增强 TPO 结构示意图。可以看到抽运光与斯托克斯光在同一谐振腔振荡, 在该装置中 THz 波频率的调谐是通过对反射镜 M2 的微小平移实现的。实验中他们尝试了 Si 棱镜阵列耦合和浅表面出射两种结构, 再一次证明了浅表面出射结构能够有效减少 THz 波的吸收损耗, 提高输出的 THz 波功

率。通过调整反射镜来阻止抽运光或斯托克斯光的振荡,分析所得数据证明了只有抽运光和斯托克斯光两者同时振荡时,才能有效降低TPO 阈值。

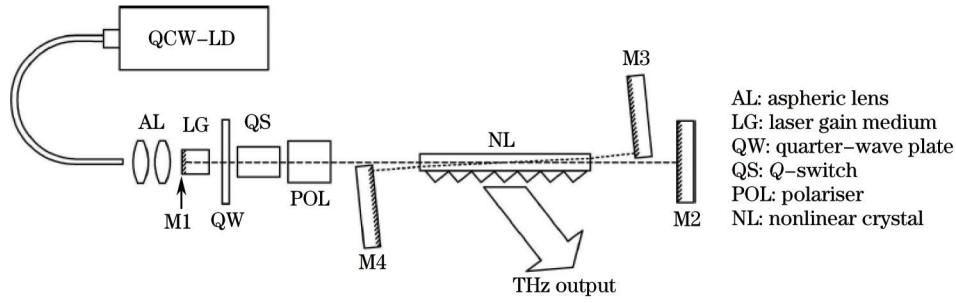


图6 内腔TPO 结构图

Fig.6 Schematic diagram of the intra-cavity TPO

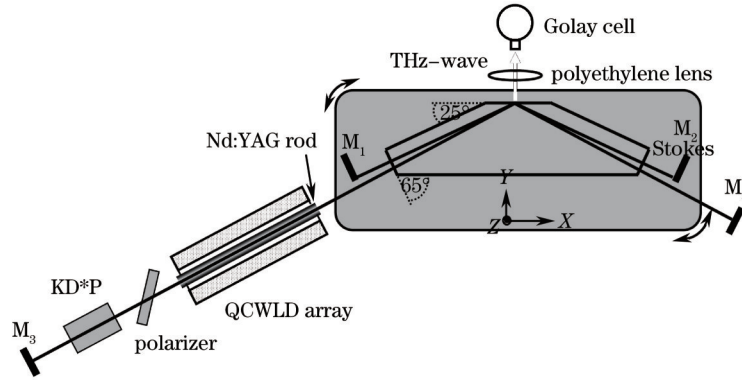


图7 浅表面出射内腔TPO 结构图

Fig.7 Schematic diagram of surface-emitted intra-cavity TPO

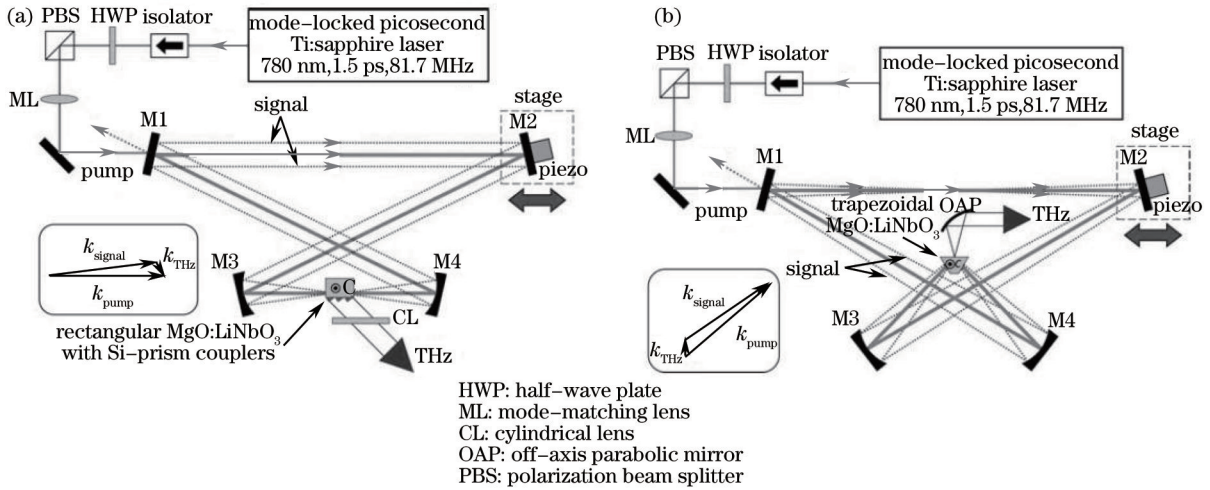


图8 腔增强TPO 结构图。(a) Si棱镜阵列耦合;(b) 浅表面出射

Fig.8 Schematic diagram of pump-enhanced TPO. (a) Si-prism-coupled; (b) surface-emitted

2.4 抽运光参数

可调谐THz波的产生原理是基于受激电磁耦子散射过程。在这个过程中,抽运光频率 ν_p , 产生的斯托克斯光频率 ν_s 和THz波频率 ν_T 之间满足能量守恒定律 $\nu_p = \nu_s + \nu_T$, 非线性相位匹配条件 $k_p = k_s + k_T$ 以余弦定理的形式可以写作

$$k_T^2 = k_p^2 + k_s^2 - 2k_p k_s \cos \theta, \tag{1}$$

式中 k_T 、 k_p 和 k_s 分别是THz波, 抽运光和斯托克斯光的波矢大小, θ 是抽运光和斯托克斯光之间的相位匹配角。(1)式中有两个独立变量 k_p 和 θ 。传统的THz波调谐方式是在固定抽运光波长的情况下,通过旋转谐振

腔,在一定范围内改变 θ 角,从而获得的一系列满足能量守恒定律和相位匹配条件调谐结果。但是这种调谐方法存在明显的限制。当增大 θ 角获得高频率的THz波时,三波(抽运光、斯托克斯光和THz波)有效相干长度必然会减小,如图9中灰色区域所示。当抽运光与斯托克斯光分离后,能量就不再发生转换,这将影响TPO的振荡阈值和THz波输出功率;而当减小 θ 角获得低频率的THz波时,小的 θ 角导致谐振腔物理长度的增加以完全分离抽运光与斯托克斯光。谐振腔的加长增加了损耗,同样影响了TPO的输出特性^[43]。

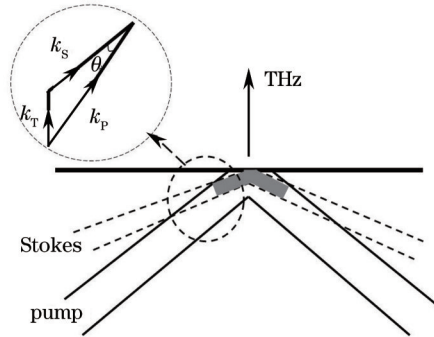


图9 抽运光和斯托克斯光在晶体中的重叠部分示意图

Fig.9 Schematic diagram of overlap regions of pump wave and Stokes wave

对于固定的 θ 角,增大抽运光光斑半径可以增加抽运光与斯托克斯光之间的有效相干长度。抽运光与斯托克斯光光斑半径关系和相干长度可以表示为^[44-45]

$$\left(\frac{\pi}{2L\lambda_p}\right)^2 \omega_s^6 + \omega_s^2 - \frac{\omega_p^2}{2} = 0, \quad (2)$$

$$L = \frac{2\omega_p}{\sin \theta} - \frac{2\omega_s}{\tan \theta}, \quad (3)$$

式中 λ_p 是抽运光波长, ω_p 和 ω_s 分别为抽运光和斯托克斯光的光斑半径, L 是谐振腔腔长, L 是抽运光与斯托克斯光的有效相干长度, θ 是非线性晶体中抽运光与斯托克斯光夹角。图10所示为抽运光光斑直径分别为3、4.5、5 mm时,相干长度与相位匹配角之间的关系图。抽运光光斑尺寸不变的情况下, θ 角越大,两束光之间的有效相干长度越短; θ 角不变的情况下,抽运光光斑半径越大,有效相干长度越长。通过减小相位匹配角和增大抽运光光斑半径,增加有效相干长度,提高三波之间的非线性相互作用,可以极大提高输出THz波的能量^[46]。

此外,可以利用抽运光波长影响非线性晶体折射率色散的性质,固定 θ 角不变,通过改变抽运光波长实现THz波的频率调谐。传统的拉曼散射过程由材料本身的最初与最终能级差决定,与抽运光波长无关。而可调谐TPO是由LiNbO₃晶体中A₁对称性晶格振动模的散射特性和三波相位匹配条件共同决定的,与近前向受激拉曼散射过程有关^[47]。因此抽运光波长对TPO频率调谐特性有着重要的影响。抽运光波长较短时,

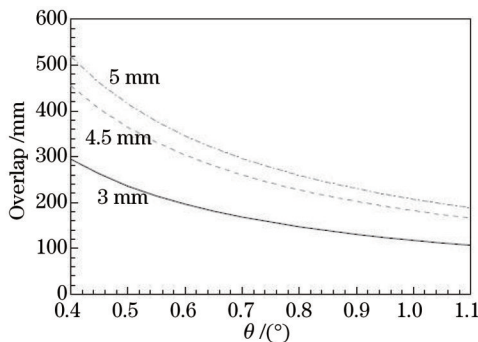


图10 三种不同抽运光光斑尺寸时,相干长度与相位匹配角之间的关系图

Fig.10 Relation between overlap and phase-matching angle for three different sizes of pump beams

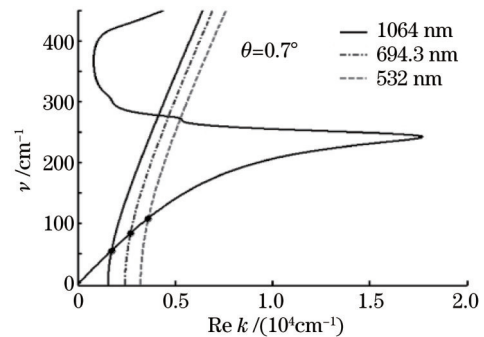


图11 LiNbO₃晶体A₁对称性晶格振动模式色散与不同抽运波长下相位匹配曲线关系图

Fig.11 Relation between dispersion curve of 248 cm⁻¹ polariton mode in LiNbO₃ and the phase-matching curves for different pump wavelengths

可以获得较大的斯托克斯频移和较高频率的 THz 波输出;抽运光波长增大时,可以获得更小的斯托克斯频移和更低频率的 THz 波输出。这种抽运波长调谐方式与角度调谐方式相结合,可以进一步增加 THz 波的调谐范围,尤其是在低频 THz 区域^[49]。图 11 所示为 LiNbO₃ 晶体 A₁ 对称性晶格振动模色散曲线与相位匹配角为 0.7° 时不同抽运波长下相位匹配曲线关系图,抽运光波长分别为 532、694.3、1064 nm,理论上对应的斯托克斯频移分别为 108、83.28、54.61 cm⁻¹, THz 波频率分别为 3.24、2.5、1.64 THz^[47]。

抽运光波长和强度对 THz 波增益系数有很大影响。图 12 为利用文献[48]中公式

$$g_T = g_s \cos \varphi = \frac{\alpha_T}{2} \left[1 + 16 \cos \varphi \left(\frac{g_0}{\alpha_T} \right)^2 - 1 \right] \quad (4)$$

模拟的理论 THz 波增益系数三维曲线。(4) 式中 φ 是抽运光与 THz 波之间的相位匹配角, α_T 是非线性晶体中 THz 波的吸收系数, g_0 是低损耗极限下的参量增益。THz 波增益系数随着抽运波长的减小而增大,增益曲线的峰值在短抽运波长区域比长波长区域增大更加显著,因此短波长抽运可以有效提高 TPO 的转换效率和减少振荡阈值。但是高功率短波长抽运很容易对非线性晶体内部产生光折变损伤,严重破坏相位匹配条件,影响 THz 波的空间相干性和在传播方向上的光场质量。

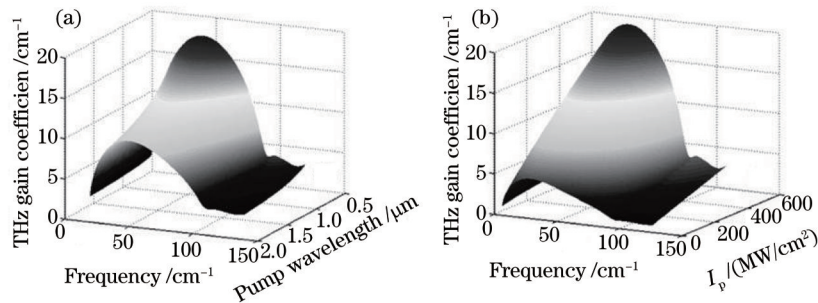


图 12 由 THz 波频率计算的 THz 波增益系数曲线。(a) 固定抽运强度 $I_p = 200 \text{ MW/cm}^2$ 时的抽运波长;
(b) 抽运波长为 1.064 μm 时的抽运强度

Fig.12 Three-dimensional plot of the calculated THz-wave gain coefficient as a function of THz-wave frequency.

(a) Pump wavelength at the fixed pump intensity of $I_p = 200 \text{ MW/cm}^2$; (b) pump intensity under pump wavelength of 1.064 μm

2.5 种子注入技术

使用低能量、窄线宽斯托克斯光作为种子光的种子注入技术,可以减小 TPO 输出 THz 波的线宽,接近或达到傅里叶变换极限的水平,提高 THz 波输出功率和转换效率^[49]。种子注入技术,是指将单纵模种子源(一般为连续光),注入高功率振荡器的谐振腔中,使激光振荡发自种子光形成的初始电场,而非多纵模情况下的自发辐射噪声。由于种子光的强度远远大于噪声辐射,从而使某个腔模形成优势振荡,脉冲建立时间短于其他模式,提前耗空反转粒子数,抑制其他模式,形成单纵模输出^[50]。

2001 年, Kawase 等^[51]利用种子注入斯托克斯光实现了窄线宽的 THz 波输出,种子源波长为 1.07 μm ,线宽小于 1 MHz。当注入种子光时,输出 THz 波的线宽为 200 MHz,这是仪器的分辨率极限,由抽运光和种子光脉冲宽度估计,输出 THz 波的线宽约为 90 MHz。TPO 的振荡阈值由没有种子光时的单脉冲能量 42 mJ 下降到单脉冲能量 40 mJ,但由于 THz 波在晶体中传播距离增加,导致斜率效率降低,THz 波输出能量由 0.23 nJ 下降到 0.14 nJ。2009 年, Walsh 等^[52]实现了种子注入内腔结构 TPO,如图 13^[52]所示。调谐范围在 1~3 THz,线宽小于 100 MHz。入射种子光能量为 1 mW 时,输出 THz 波单脉冲能量大于 5 nJ,量子转换效率达到 68%。

然而,为了实现给宽带可调谐波长的 TPO 注入种子光,必须要控制抽运光与种子光之间的角度,调谐种子光的波长,同时还要控制斯托克斯光谱谐振腔长度以满足种子光频率的谐振模式^[52],操作较为复杂。因此,种子注入技术通常用于谐振腔的太赫兹波参量发生器(TPG)中。TPG 与 TPO 的结构相似,两者最主要的区别在于后者有斯托克斯光谱谐振腔,而前者没有。

3 结束语

THz 波技术在很多基础领域有重要科研意义,并且在通信、成像、检测、军事等领域有着广泛的应用前

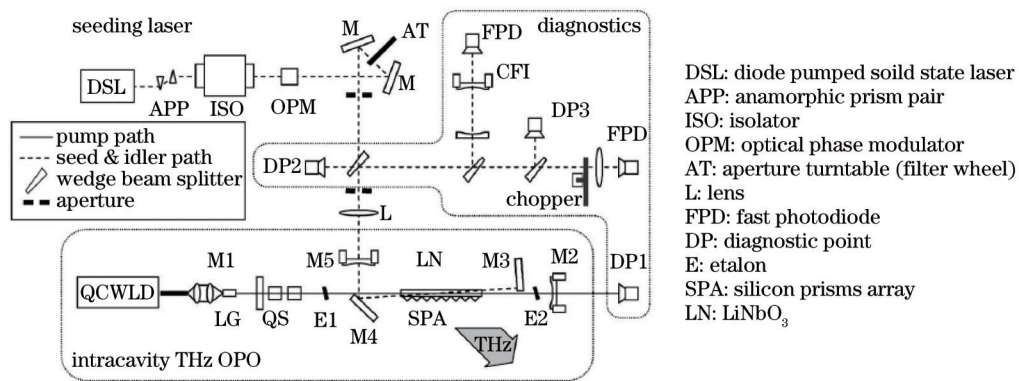


图 13 种子注入内腔 TPO 结构图

Fig.13 Schematic diagram of injection-seeded intra-cavity TPO

景。但是目前仍缺少便携、操作简单、高功率、窄线宽、可调谐、室温工作的 THz 源。本文以 THz 波参量振荡技术为重点,从 TPO 结构入手介绍了国内外的研究进展。非线性晶体方面, LiNbO_3 晶体和 PPLN 晶体被大量用于 TPO 研究,通过掺杂 MgO 可以有效提高 LiNbO_3 晶体的光损伤阈值,提高其抗光折变的能力;输出耦合方面,浅表面出射结构逐渐替代 Si 棱镜阵列耦合结构,减小 THz 波在晶体中的传播距离,实现更高能量、更好光束质量的输出;谐振腔结构方面,内腔结构和外腔结构都有各自的优势,而由外腔结构改进的腔增强结构,使抽运光和斯托克斯光同时振荡,可以有效降低 TPO 的振荡阈值;抽运光参数方面,抽运光的波长、强度和光斑尺寸等都会对 TPO 产生影响,在实验中需要合理选择;最后介绍了种子注入技术,可以有效压缩输出 THz 波的线宽,提高光束质量,但也存在频率调谐复杂的问题。今后 TPO 可能的发展趋势总结为以下几点:

- 1) 随着新材料的研究,会有非线性系数更大、THz 波吸收系数更低、光损伤阈值更高的新型非线性晶体替代 LiNbO_3 晶体;
- 2) 抽运光光束质量会对输出 THz 波造成影响。利用高光束质量、高功率光纤激光器替代传统 Nd:YAG 调 Q 激光器抽运,获得功率更高、光束质量更好的 THz 波输出;
- 3) TPO 实验中可以观测到高阶斯托克斯光,二阶斯托克斯光由一阶斯托克斯光和 THz 波差频产生。改变 TPO 结构以增强二阶甚至更高阶斯托克斯光的差频过程,可以进一步提高转换效率,获得更高功率的 THz 波输出。

随着 TPO 的发展,这种实用高效的 THz 波源一定会在越来越多的领域中发挥重要作用。

参考文献

- 1 Wang Ruijun, Wang Hongqiang, Zhuang Zhaowen, *et al.*. Research progress of terahertz radar technology[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2013, 50(4): 040001.
王瑞君, 王宏强, 庄判文, 等. 太赫兹雷达技术研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2013, 50(4): 040001.
- 2 Li Qi, Ding Shenghui, Li Yunda, *et al.*. Advances in research on THz digital holographic imaging[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2012, 49(5): 050006.
李琦, 丁胜晖, 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.
- 3 Lu Shuhua. Detection of explosives by terahertz spectroscopic techniques[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2012, 49(4): 040006.
卢树华. 基于太赫兹光谱技术的爆炸物类危险品检测[J]. *激光与光电子学进展*, 2012, 49(4): 040006.
- 4 Li Xinlei, Li Biao. Review on progress of real-time THz sensing and imaging technology[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2012, 49(9): 090008.
李昕磊, 李彪. 实时太赫兹探测与成像技术新进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2012, 49(9): 090008.
- 5 Sun Bo, Yao Jianquan. Generation of terahertz wave based on optical methods[J]. *Chinese J Lasers*, 2006, 33(10): 1349-1359.
孙博, 姚建铨. 基于光学方法的太赫兹辐射源[J]. *中国激光*, 2006, 33(10): 1349-1359.
- 6 Kawase K, Shikata J, Imai K, *et al.*. Transform-limited, narrow-linewidth, terahertz-wave parametric generator[J]. *Appl Phys Lett*, 2001, 78(19): 2819-2821.

- 7 Ma Chengju, Chen Yanwei, Xiang Jun, *et al.*. Progress in generation of terahertz radiation[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2007, 44(4): 56–61.
马成举, 陈延伟, 向 军, 等. 太赫兹辐射产生技术进展[J]. 激光与光电子学进展, 2007, 44(4): 56–61.
- 8 Vodopyanov K L, Hurlbut W C, Kozlov V G. Photonic THz generation in GaAs via resonantly enhanced intracavity multispectral mixing[J]. Appl Phys Lett, 2011, 99(4): 041104.
- 9 Shi W, Ding Y J. Continuously tunable and coherent terahertz radiation by means of phase-matched difference-frequency generation in zinc germanium phosphide[J]. Appl Phys Lett, 2003, 83(5): 848–850.
- 10 Ding Y J, Shi W. Widely-tunable, monochromatic, and high-power terahertz sources and their applications[J]. J Nonlinear Optical Physics & Materials, 2003, 12(04): 557–585.
- 11 Kawase K, Hatanaka T, Takahashi H, *et al.*. Tunable terahertz-wave generation from DAST crystal by dual signal-wave parametric oscillation of periodically poled lithium niobate[J]. Opt Lett, 2000, 25(23): 1714–1716.
- 12 Bahoura M, Herman G S, Barnes N P, *et al.*. Terahertz wave source via difference-frequency mixing using cross-Reststrahlen band dispersion compensation phase matching: a material study[C]. SPIE, 2000, 3928: 132–140.
- 13 Ding Y J, Zotova I B. Coherent and tunable terahertz oscillators, generators, and amplifiers[J]. J Nonlinear Optical Physics & Materials, 2002, 11(1): 75–97.
- 14 Hayashi S, Nawata K, Sakai H, *et al.*. High-power, single-longitudinal-mode terahertz-wave generation pumped by a microchip Nd:YAG laser[J]. Opt Express, 2011, 20(3): 2881–2886.
- 15 Yarborough J M, Sussman S S, Purhoff H E, *et al.*. Efficient, tunable optical emission from LiNbO₃ without a resonator [J]. Appl Phys Lett, 1969, 15(3): 102–105.
- 16 Johnson B C, Puthoff H E, Soohoo S, *et al.*. Power and linewidth of tunable stimulated far-infrared emission in LiNbO₃ [J]. Appl Phys Lett, 1971, 18(5): 181–183.
- 17 Piestrup M A, Fleming R N, Pantell R H. Continuously tunable submillimeter wave source[J]. Appl Phys Lett, 1975, 26(8): 418–421.
- 18 Kawase K, Sato M, Taniuchi T, *et al.*. Coherent tunable THz-wave generation from LiNbO₃ with monolithic grating coupler[J]. Appl Phys Lett, 1996, 68(18): 2483–2485.
- 19 Ashkin A, Boyd G D, Dziedzic J M, *et al.*. Optically-induced refractive index inhomogeneities in LiNbO₃ and LiTaO₃[J]. Appl Phys Lett, 1966, 9(1): 72–74.
- 20 Zhong Jiguo, Jin Jian, Wu Zhongkang. Measurement on photorefractive effect of MgO:LiNbO₃[J]. Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Nankaiensis, 1980, (1): 59.
仲跻国, 靳 健, 吴仲康. 掺镁铌酸锂晶体的光折变测定[J]. 南开大学学报(自然科学版), 1980, (1): 59.
- 21 Jin Chan, Li Minghua, Liu Jinsong, *et al.*. Study on mechanism of MgO:LiNbO₃ resistance to light damage[J]. Acta Photonica Sinica, 1994, 23(6): 530–534.
金 婵, 李铭华, 刘劲松, 等. 掺镁铌酸锂晶体抗光损伤机理的研究[J]. 光子学报, 1994, 23(6): 530–534.
- 22 Armstrong J A, Bloembergen N, Ducuing J, *et al.*. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric[J]. Phys Rev, 1962, 127(6): 1918–1939.
- 23 Molter D, Theuer M, Beigang R. Nanosecond terahertz optical parametric oscillator with a novel quasi phase matching scheme in lithium niobate[J]. Opt Express, 2009, 17(8): 6623–6628.
- 24 Shikata J, Sato M, Taniuchi T, *et al.*. Enhancement of terahertz-wave output from LiNbO₃ optical parametric oscillators by cryogenic cooling[J]. Opt Lett, 1999, 24(4): 202–204.
- 25 Li Zhongyang, Yao Jianquan, Xu Degang, *et al.*. Experimental investigation of high-power tunable THz-wave parametric oscillator based upon MgO:LiNbO₃ crystal[J]. Chinese J Lasers, 2011, 38(4): 0411002.
李忠洋, 姚建铨, 徐德刚, 等. 铌酸锂晶体中参量振荡产生高功率可调谐太赫兹波的实验研究[J]. 中国激光, 2011, 38(4): 0411002.
- 26 Liu Lei, Li Xiao, Liu Tong, *et al.*. Progress of terahertz wave parametric oscillator[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2012, 49(9): 090001.
刘 磊, 李 霄, 刘 通, 等. 太赫兹波参量振荡器研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2012, 49(9): 090001.
- 27 Kawase K, Shikata J, Ito H. Terahertz wave parametric source[J]. J Phys D: Appl Phys, 2002, 35(3): R1–R14.
- 28 Kawase K, Sato M, Nakamura K, *et al.*. Unidirectional radiation of widely tunable THz wave using a prism coupler under noncollinear phase matching condition[J]. Appl Phys Lett, 1997, 71(6): 753–755.

- 29 Kawase K, Shikata J, Minamide H, *et al.*. Arrayed silicon prism coupler for a terahertz-wave parametric oscillator[J]. *Appl Opt*, 2001, 40(9): 1423–1426.
- 30 Ikari T, Zhang X, Minamide H, *et al.*. THz-wave parametric oscillator with a surface-emitted configuration[J]. *Opt Express*, 2006, 14(4): 1604–1610.
- 31 Avetisyan Y, Sasaki Y, Ito H. Analysis of THz-wave surface-emitted difference-frequency generation in periodically poled lithium niobate waveguide[J]. *Appl Phys B*, 2001, 73(5–6): 511–514.
- 32 Li Zhongyang, Yao Jianquan, Xu Degang, *et al.*. Output enhancement of a THz wave based on a surface-emitted THz-wave parametric oscillator[J]. *Chin Phys Lett*, 2011, 28(11): 114201.
- 33 Li Zhongyang, Yao Jianquan, Lü Da, *et al.*. High-power terahertz radiation based on a compact eudipleural THz-wave parametric oscillator[J]. *Chin Phys Lett*, 2011, 28(6): 064209.
- 34 Zhang Xianbin, Shi Wei. Optimize the output performance by shortening the cavity length of the THz electromagnetic wave parametric oscillator[J]. *Acta Physica Sinica*, 2006, 55(10): 5237–5241.
张显斌, 施卫. 用短谐振腔结构优化 THz 电磁波参量振荡器的输出特性[J]. *物理学报*, 2006, 55(10): 5237–5241.
- 35 Wang Weitao, Zhang Xingyu, Wang Qingpu, *et al.*. Multiple-beam output of a surface-emitted terahertz-wave parametric oscillator by using a slab MgO:LiNbO₃ crystal[J]. *Opt Lett*, 2014, 39(4): 754–757.
- 36 Walsh D, Stothard D J M, Edwards T J, *et al.*. Injection-seeded intracavity terahertz optical parametric oscillator[J]. *J Opt Soc Am B*, 2009, 26(6): 1196–1202.
- 37 Edwards T, Walsh D, Spurr M, *et al.*. Compact source of continuously and widely-tunable terahertz radiation[J]. *Opt Express*, 2006, 14(4): 1582–1589.
- 38 Yao J Q, Wang Y Y, Xu D G, *et al.*. High-energy, continuously tunable intracavity terahertz-wave parametric oscillator [C]. 34th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves, 2009. 1–2.
- 39 Li Z Y, Li J, Bing P, *et al.*. Design and threshold analysis for a novel intracavity THz-wave parametric oscillator[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2012, 41(9): 2339–2345.
- 40 Molter D, Theuer M, Beigang R. Nanosecond terahertz optical parametric oscillator with a novel quasi phase matching scheme in lithium niobate[J]. *Opt Express*, 2009, 17(8): 6623–6628.
- 41 Takida Y, Maeda S, Ohira T, *et al.*. Noncascading THz-wave parametric oscillator synchronously pumped by mode-locked picosecond Ti:sapphire laser in doubly-resonant external cavity[J]. *Opt Commun*, 2011, 284(19): 4663–4666.
- 42 Takida Y, Ohira T, Tadokoro Y, *et al.*. Tunable picosecond terahertz-wave parametric oscillators based on noncollinear pump-enhanced signal-resonant cavity[J]. *IEEE J Quant Electron*, 2013, 19(1): 8500307.
- 43 Sun B, Liu J, Li E. Investigation of a novel frequency-tuning method for terahertz-wave parametric oscillators[J]. *Opt Express*, 2008, 16(25): 20817–20825.
- 44 Brosnan S J, Byer R L. Optical parametric oscillator threshold and linewidth studies[J]. *IEEE J Quant Electron*, 1979, 15(6): 415–431.
- 45 Li Zhongyang, Yao Jianquan, Zhu Zhengnian, *et al.*. Threshold analysis of a THz-wave parametric oscillator[J]. *Chin Phys Lett*, 2010, 27(6): 064202.
- 46 Xu Degang, Zhang Hao, Jiang Hao, *et al.*. High energy terahertz parametric oscillator based on surface-emitted configuration[J]. *Chin Phys Lett*, 2013, 30(2): 024212.
- 47 Sun Bo, Liu Jinsong, Li Enbang, *et al.*. Investigation of pump-wavelength dependence of terahertz-wave parametric oscillator based on LiNbO₃[J]. *Chinese Phys B*, 2009, 18(7): 2846–2852.
- 48 Shikata J, Kawase K, Karino K, *et al.*. Tunable terahertz-wave parametric oscillators using LiNbO₃ and MgO:LiNbO₃ crystals[J]. *IEEE Trans on Microwave Theory and Techniques*, 2000, 48(4): 653–661.
- 49 Imai K, Kawase K, Shikata J, *et al.*. Injection-seeded terahertz-wave parametric oscillator[J]. *Appl Phys Lett*, 2001, 78(8): 1026–1028.
- 50 Guo Shaofeng, Lin Wenxiong, Li Quan, *et al.*. Single axial and transverse mode electro-optic Q-switched laser based on injection-seeding technique and self filtering unstable resonator[J]. *Chinese J Lasers*, 2007, 33(12): 1585–1589.
郭少锋, 林文雄, 黎全, 等. 种子注入式单纵单横电光调 Q 激光器[J]. *中国激光*, 2007, 33(12): 1585–1589.
- 51 Walsh D, Stothard D J M, Edwards T J, *et al.*. Injection-seeded intracavity terahertz optical parametric oscillator[J]. *J Opt Soc Am B*, 2009, 26(6): 1196–1202.
- 52 Imai K, Sugawara S, Shikata J, *et al.*. The effect of injection seeding on terahertz parametric oscillation[J]. *Electronics and Communications in Japan (Part II: Electronics)*, 2003, 86(1): 26–35.