

文章编号: 0253-2239(2008)05-1012-05

# 基于耦合场量子受激拉曼散射的太赫兹波辐射

张显斌 施 卫

(西安理工大学应用物理系, 陕西 西安 710048)

**摘要** 使用两块长度各为 65 mm 的 MgO:LiNbO<sub>3</sub> 和无掺杂 LiNbO<sub>3</sub> 晶体, 以 1064 nm 的 Q 开关 Nd:YAG 激光器作为抽运光源, 在 12 mJ/pulse 的抽运光能量下得到频率范围为 0.34~2.90 THz 的电磁辐射。分析表明, 激光入射使 LiNbO<sub>3</sub> 晶体中具有电磁特性的横光学声子可以和入射光子形成耦合场量子。作为一种电磁特性的元激发, LiNbO<sub>3</sub> 晶体的耦合场量子的辐射场频率覆盖部分太赫兹频段范围, 并可通过耦合场量子受激拉曼散射过程辐射 THz 波。根据耦合场量子辐射理论, 通过分析晶体的耦合场量子色散特性曲线, 可以确定该晶体能否辐射 THz 波及其带宽范围。

**关键词** 光谱学; 太赫兹电磁波; 耦合场量子; LiNbO<sub>3</sub>; 耦合场量子的受激拉曼散射

**中图分类号** O433.1 **文献标识码** A

## THz Electromagnetic Radiation Based on the Stimulated Raman Scattering of Polariton

Zhang Xianbin Shi Wei

(Department of Applied Physics, Xian University of Technology, Xian, Shaanxi 710048, China)

**Abstracts** By using MgO:LiNbO<sub>3</sub> and undoped LiNbO<sub>3</sub> crystals of 65 mm length, terahertz (THz) wave with the bandwidth of 0.34~2.90 THz is generated by using 1064 nm Q-switched Nd:YAG laser with the energy of 12 mJ/pulse. Analysis shows that the polariton is an elementary excitation coupled from the electromagnetic TO phonon and incident photon. In the LiNbO<sub>3</sub> crystal, the radiation frequency of polariton, which has the electromagnetic properties, can partly cover THz range, and the stimulated Roman scattering for the polariton can generate THz wave. Furthermore, the radiation theory of polariton shows the dispersion characteristic of the polariton can determine the possibility of the crystal generating the THz wave, as well as its bandwidth range.

**Key words** spectroscopy; THz electromagnetic wave; polariton; LiNbO<sub>3</sub>; stimulated Roman scattering of polariton

### 1 引 言

亚毫米太赫兹(THz)电磁波产生技术、太赫兹波探测技术、太赫兹波应用技术研究, 形成了目前太赫兹电子学(或太赫兹光学)前沿领域中的三个方面<sup>[1~5]</sup>。太赫兹波频率范围认为是 0.1~10.0 THz, 它对大多数物质的高穿透性, 以及物质在 THz 频段丰富的频谱特性, 使其在凝聚态物理、天体物理、生物、医学、安全检测等众多领域中具有广泛应用前景。但是, 在电子学领域, 由于受限于电路中电子运

动速度的限制, THz 频段被普遍认为是电子器件类辐射源频率的上限, 这类辐射源即使产生 0.1 THz 的电磁辐射也是困难的。而在光学领域, THz 波属于远红外辐射(FRI)范畴, 这类基于材料带间跃迁的电磁辐射方法由于辐射频率的下限受限于材料能带隙宽度, 因此很难产生低频电磁波, THz 频段可以看成是基于带间辐射方法产生远红外电磁辐射频率的下限。

Shen 等<sup>[10]</sup>提出可以通过非线性光学晶体产生

**收稿日期:** 2007-09-17; **收到修改稿日期:** 2007-10-30

**基金项目:** 国家自然科学基金(10390160, 60771053)、陕西省自然科学研究计划(2005A03)和西安理工大学科学研究计划 A 类项目(108-210703)资助课题。

**作者简介:** 张显斌(1969—), 男, 西安人, 副教授, 博士, 主要从事超快光电子器件、激光与物质相互作用等方面的研究。  
E-mail: zhangxianbin@xaut.edu.cn

远红外电磁波。Kawase 等<sup>[11]</sup>实现了基于非线性 LiNbO<sub>3</sub> 的 THz 电磁波参变振荡器。这种 THz 辐射源具有准连续方式输出、频率连续调谐、窄线宽和室温下工作等特点。文献[12,13]报道了用短腔长结构降低 THz 电磁波参变振荡器的振荡阈值,并对其输出特性进行优化。目前,对 THz 电磁波参变振荡器的辐射机理可以用非线性光学的参变过程和参变振荡过程进行描述;而 Kawase 等<sup>[14]</sup>认为 LiNbO<sub>3</sub> 晶体辐射 THz 波不仅与二阶非线性光学效应有关,也和三阶效应(受激拉曼散射)有关。但是实验表明,参变过程和参变振荡过程只能作为描述 THz 电磁波参变振荡器的一般性描述。在利用参变振荡过程描述 THz 辐射机理时,实际上是把 THz 波的产生看成是 THz 噪声光子的放大过程。但是并不是所有晶体的参变过程和参变振荡过程都可以辐射 THz 波;同样,并不是所有晶体的受激拉曼散射过程都伴随 THz 波辐射。

本文从入射抽运激光光场与晶体中大量原子相互作用的角度,研究了 LiNbO<sub>3</sub> 耦合场量子(polariton)的色散特性,并通过与耦合场量子相联系的受激拉曼散射过程,研究了辐射 THz 波的机理。分析认为, LiNbO<sub>3</sub> 晶体的耦合场量子色散特性是其辐射 THz 波的物理基础,决定了可以通过参变过程、参变振荡过程或拉曼散射过程辐射 THz 电磁波,同时决定了该种晶体辐射 THz 波的频率范围。此外,分析了 LiNbO<sub>3</sub> 晶体耦合场量子辐射 THz 波的输出特性及其 THz 波饱和输出实验现象。

## 2 耦合场量子及其受激拉曼散射过程

固体理论表明晶体中包含了大量的具有量子特性的元激发。元激发也是晶体中激发态的基本激发单元,而声子就是晶体中最为典型的元激发。黄昆方程的解<sup>[15]</sup>表明极性晶体中与光学声子对应的长光学横波虽然不伴随极化电场,但是却具有电磁特性。如图 1 所示,每个矩形代表晶体中原胞。当光学横波沿  $x$  方向传播(波矢  $k$  沿  $x$  方向),原胞的正负电荷则沿  $y$  方向分离。但是在波矢  $k$  的垂直方向, $y$  方向上下相邻两个原胞的交界处正负电荷相互抵消,此时晶体内部无净极化电荷,但在  $y$  方向上下端的两个“原胞”表面则出现无法和其它原胞电荷相互抵消的正负电荷。其结果表现为当光学横波沿  $x$  方向通过晶体的时候,在  $y$  方向瞬时地有电荷从一端涌向另一端,形成位移电流,而且沿波矢方向

相邻的两个半波长范围内,此位移电流的方向相反,又可等效于环状电流。这个随时间变化的位移电流会感生出磁场,该磁场又感生出电场(位移电流)。因此光学横波伴随的是电磁场,其电场旋度来自磁场随时的变化,磁场的旋度又来自电场随时的变化,电场和磁场交替激发形成伴随的电磁场。当然,横光学声子(TO 声子)的电磁性是潜在的,要通过光的入射才能表现出来。在实验中激光入射晶体时可以激发起光学波。由于光学横波具有电磁特性,其电磁场会和入射激光的光场发生相互作用、相互耦合,象耦合摆那样耦合起来。这种相互耦合作用使入射激光光场和 TO 声子形成一种新的元激发,即耦合场量子。

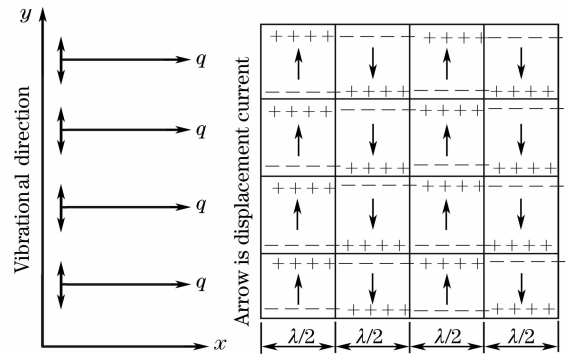


图 1 横向极化波场电磁性质示意图

Fig. 1 Electromagnetic property of transverse polarization field

耦合场量子是描述入射光波与晶体电磁性元激发相互作用的能量子,它本身可以辐射电磁波,并具有类似光子和类似声子的双重特性。在辐射场处于高频且耦合场量子波矢较小,以及低频大波矢情况下,其类声子特性是主要的,此时反映出耦合场量子保持着的晶格振动特征;在辐射场处于低频且耦合场量子波矢较小,以及高频大波矢时,其类光子特性明显,此时耦合场量子保持了光波特点。理论上,离子晶体在一定条件下都可以形成耦合场量子并产生电磁辐射,但显然并不是所有晶体的耦合场量子都可以辐射 THz 电磁波,这取决于该晶体的耦合场量子色散特性,即其辐射场频率是否覆盖或部分覆盖了 THz 频段。而一种晶体的耦合场量子色散特性主要反映在其色散特性曲线上。

LiNbO<sub>3</sub> 晶体属于三角晶系 3m 点群的负单轴极性晶体。当 ns 脉宽的抽运激光入射晶体后将在晶体中形成耦合场量子。LiNbO<sub>3</sub> 晶体耦合场量子的色散特性曲线,可以通过测量与耦合场量子相联系的拉曼散射过程获得。如图 2 所示,与耦合场量

子相联系的拉曼散射过程涉及三个量子的波矢。三个量子在遵守动量和能量守恒下的波矢关系应满足

$$k_p^2 = k_i^2 + k_T^2 - 2k_i^2 k_T^2 \cos \theta, \quad (1)$$

式中  $k_p$ 、 $k_i$ 、 $k_T$  分别为入射抽运激光光子、拉曼散射光子、耦合场量子波矢大小,  $\theta$  为散射角度。图 3 为 LiNbO<sub>3</sub> 的耦合场量子色散特性曲线。

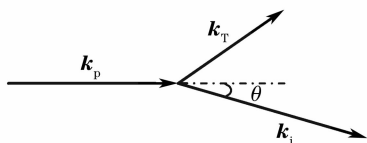


图 2 与耦合场量子相联系的拉曼散射中三个量子的波矢关系

Fig. 2 Wave vector relation in the Raman scattering of polariton

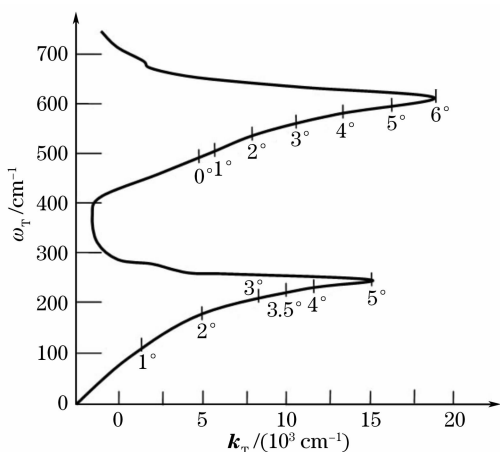


图 3 LiNbO<sub>3</sub> 的耦合场量子色散曲线

Fig. 3 Dispersive curve of polariton in LiNbO<sub>3</sub> crystal

THz 波的频率范围通常认为是 0.1~10.0 THz, 对应的波数大约在 33~330 cm<sup>-1</sup>。注意到 LiNbO<sub>3</sub> 晶体的耦合场量子色散曲线, 其中 248 cm<sup>-1</sup> 附近所对应的辐射频率大约在 7.4 THz。表明理论上利用 LiNbO<sub>3</sub> 晶体的耦合场量子是可以辐射产生 THz 波。如图 2 和(1)式所示, 不同的散射角方向, 晶体辐射 THz 波的频率不同。如图 3 所示, 理论上在 0°~5° 的散射角范围内, 辐射 THz 波的频率范围为 0.0~7.5 THz。但是, 在实验中得到的 THz 波的带宽范围要小于理论值。主要原因是抽运激光在 LiNbO<sub>3</sub> 晶体中的拉曼散射增益影响了 THz 波的频率调谐范围。

耦合场量子辐射电磁波的过程导致入射激光通过晶体后发生频移。因此耦合场量子必然伴随与之相联系的拉曼散射现象。实验表明, 当入射激光达到一定功率阈值水平后, 散射光因受激效应强度迅速增长, 还会表现为与耦合场量子相联系的受激拉

曼散射效应, 辐射的 THz 波强度也随之增高。

### 3 实验及结果分析

图 4 是利用 LiNbO<sub>3</sub> 晶体的耦合场量子产生 THz 电磁波实验测试装置。使用的晶体是 LiNbO<sub>3</sub>。抽运激光束入射晶体时会产生与耦合场量子相关的拉曼散射或受激拉曼散射。伴随着耦合场量子辐射 THz 波, 同时形成了斯托克斯光。晶体长度选择的依据是保证在抽运激光强度一定的条件下, 该晶体长度能满足与耦合场量子相联系的受激拉曼散射发生所需的条件。设  $g$ 、 $I_p$ 、 $L$  分别为晶体的拉曼增益因子、抽运光强度、晶体有效长度, 根据非线性光学基本原理, 通常将满足  $gI_pL = 25$  作为受激拉曼散射开始发生的标志。虽然上式表示增加晶体长度有利于受激拉曼散射发生, 但实际晶体长度的选择还需要考虑晶体长度增加伴随而来的对三波吸收损耗的增加。实验中, 抽运光源是型号为 New Wave Minlase II 的 Q 开关 Nd:YAG 激光器, 波长 1064 nm, 脉冲宽度 7 ns, 重复频率 16.7 Hz, 单脉冲能量可调节输出。实验表明, 本文选择两块长度各为 65 mm 的 MgO:LiNbO<sub>3</sub> 和无掺杂 LiNbO<sub>3</sub> 晶体作为非线性介质。MgO:LiNbO<sub>3</sub> 的拉曼增益较大, 主要作用是增加斯托克斯光的强度, LiNbO<sub>3</sub> 晶体主要作为产生 THz 波的介质。两块 65 mm 长的晶体有效长度为 130 mm, 满足了耦合场量子相联系的受激拉曼散射发生所需的条件。按照波矢关系, THz 波将从晶体表面沿着一定的方向辐射出来。根据 LiNbO<sub>3</sub> 晶体耦合场量子的色散特性, 在一定范围内的色散角度, 将会形成一定波长范围的斯托克斯光束。在实验中, 由汇聚透镜将斯托克斯光通过光纤送入光谱分析仪。斯托克斯光具有一定

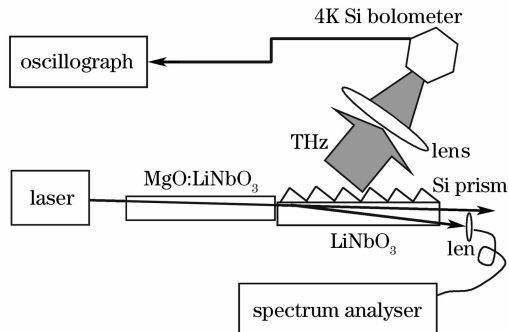


图 4 利用耦合场量子受激散射过程产生 THz 波实验装置图

Fig. 4 Experimental setup for generating THz wave based on the polariton stimulated Raman scattering

的波长范围,因而辐射 THz 波也是宽带 THz 波。其带宽范围虽然无法由探测器直接测量,但可根据抽运光、闲频光以及 THz 波之间的波矢关系,通过测量闲频光波长间接对 THz 波辐射频率进行测量。把宽带 THz 波通过 THz 波专用会聚透镜(聚氯乙烯材料)送入 4 K 真空量热器当中, Si 探测器将微弱的 THz 波能量转化成电信号送入示波器进行强度分析。由于 THz 波在晶体中的折射率较大,为了避免 THz 波在晶体内部多次全反射而被吸收,实验利用了由 Kawase<sup>[11]</sup> 等人设计的 Si 棱镜阵列输出耦合器让 THz 波输出到自由空间。

图 5 是在 12 mJ/pulse 抽运光能量下测量斯托克斯光谱图。图中斯托克斯光范围为 1066~1076 nm, 所对应 THz 波带宽为 0.34~2.90 THz, 这也就是测量耦合场量子辐射 THz 波的实际带宽。斯托克斯光峰值位置在 1070 nm 处, 所对应的拉曼频移是  $47\text{ cm}^{-1}$ , 表明耦合场量子在  $47\text{ cm}^{-1}$  处有较大增益。如图 6 所示, 在抽运光能量为 17 mJ/pulse 时测量斯托克斯光波长范围是 1066~1078 nm, 该范围理论上对应的 THz 波带宽为 0.34~3.48 THz。图 6 显示, 在 1070 nm 处, 本应出现与图 5 类似的峰值, 但实际则为明显的凹陷。这是由于波长为 1070 nm 的一次斯托克斯光发生耦合场量子的二阶拉曼散射造成的。此时 1070 nm 的闲频光相当于一入射抽运激光, 同样会发生耦合场量子的受激拉曼散射现象。耦合场量子的二阶拉曼散射效应会带来 THz 波输出的饱和现象。如图 7 所示, 随着抽运光能量增加, 晶体输出 THz 波的强度也逐渐增加, 但当抽运光能量接近 16 mJ/pulse 时, THz 波输出基本稳定在 0.8 nJ 的平均水平。此时抽运光的能量更多地转移到二次斯托克斯光中。耦合场量子的二阶拉曼散射也会给测量 THz 波输出线宽带来误差, 即根据实际

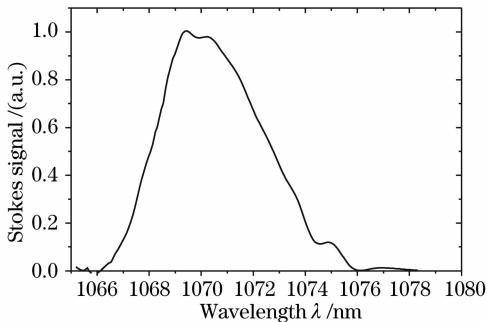


图 5 抽运能量为 12 mJ/pulse 下的斯托克斯光谱  
Fig. 5 Stocks spectrum with the pump energy of 12 mJ/pulse

测量斯托克斯光波长范围来推测 THz 波带宽会有误差。因此要 LiNbO<sub>3</sub> 晶体输出 THz 波的实际带宽, 一定要在没有发生耦合场量子的二阶拉曼散射条件下进行。

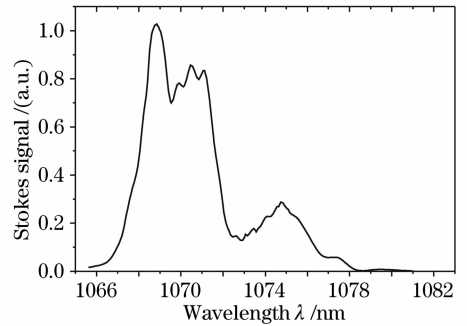


图 6 由耦合场量子的拉曼散射形成的斯托克斯光谱  
Fig. 6 Stocks spectrum in the process of polariton Roman scattering

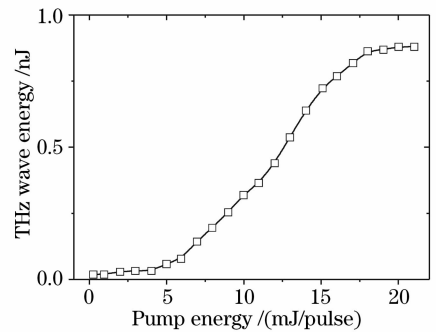


图 7 耦合场量子拉曼散射中 THz 波饱和输出现象  
Fig. 7 Saturation of THz output in the polariton Roman scattering

## 4 结 论

LiNbO<sub>3</sub> 晶体的耦合场量子色散特性是其辐射 THz 波的物理基础。作为电磁性元激发, 耦合场量子具有类声子和类光子的双重特性。其辐射场频率可以部分覆盖 THz 频段范围, 这使得耦合场量子的受激拉曼散射过程可以产生 THz 波。根本性地决定了通过参变过程、参变振荡过程或拉曼散射过程辐射 THz 电磁波; 也决定了 LiNbO<sub>3</sub> 晶体辐射 THz 波的频率范围。进一步说明, 对于某种晶体而言, 通过分析该晶体的耦合场量子色散特性曲线, 可以确定该晶体能否辐射 THz 波, 以及辐射 THz 波的带宽范围。

本文实验中介质为两块长度各为 65 mm 的 MgO:LiNbO<sub>3</sub> 和无掺杂 LiNbO<sub>3</sub> 晶体, 使用波长 1064 nm 的 Q 开关 Nd:YAG 激光作为抽运光源, 在抽运光能量为 12 mJ/pulse 下测量的辐射带宽范围

为 0.34~2.90 THz。这说明使用波长 1064 nm 红外抽运光入射 LiNbO<sub>3</sub> 晶体后,就可以形成耦合场量子并通过耦合场量子的拉曼散射过程辐射 THz 波;还反映出实际的 THz 波辐射频率范围不仅取决于 LiNbO<sub>3</sub> 晶体耦合场量子色散特性,还与晶体的拉曼增益有关。

在抽运光能量为 17 mJ/pulse 时,观察到 THz 输出饱和现象。饱和现象与 LiNbO<sub>3</sub> 耦合场量子的二阶拉曼散射过程有关。

**致谢** 感谢日本东北大学电气通信研究所及日本 RIKEN 研究所 Ito 研究室的 H. Ito 教授、T. Ikari 博士在实验方面,以及日本东北大学 C. Takyu, T. Shoji 先生在晶体加工方面给予的支持;感谢西安理工大学余宁梅教授对研究工作提供的帮助。

### 参 考 文 献

- 1 Kunihiro Ishihara, Keishi Ohashi, Ikari Tomofumi *et al.*. Terahertz-wave near-field imaging with subwavelength resolution using surface-wave-assisted bow-tie aperture[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2006, **89**(20): 201120-1~3
- 2 Jia Yan, Chen Sijia, Li Ning *et al.*. Identification of terahertz absorption spectra of illicit drugs using back propagation neural networks[J]. *Chin. J. Laser*, 2007, **34**(5): 719~722  
贾 燕,陈思嘉,李 宁等. 利用误差逆传播神经网络法识别几种毒品的太赫兹光谱[J]. *中国激光*, 2007, **34**(5): 719~722
- 3 S. Wang, X. C. Zhang. Pulsed terahertz tomography[J]. *J. Phys. D*, 2004, **37**(4): R1~R36
- 4 J. C. Cao, H. C. Liu, X. L. Lei *et al.*. Chaotic dynamics in terahertz driven semiconductors with negative effective mass[J]. *Phys Rev. B*, 2001, **63**(11): 115308-1~12
- 5 Sun Hongqi, Zhao Guozhong, Tian Yan *et al.*. Transverse mode distribution of THz wave by THz imaging technology[J]. *Chin. J. Laser*, 2006, **33**(9): 1225~1229
- 6 Shingo Ono, Takeyo Sukamoto, Masahiro Sakai *et al.*. Compact THz-radiation source consisting of a bulk semiconductor a mode locked fiber laser and a 2T permanent magnet[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2000, **71**(2): 554~556
- 7 Y. C. Shen, P. C. Upadhyaya, E. H. Linfield *et al.*. Ultrabroadband terahertz radiation from low-temperature-grown GaAs photoconductive emitters[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2003, **83**(15): 3117~3119
- 8 Jun-ichi Nishizawa, Tetsuo Sasaki, Ken Suto *et al.*. THz transmittance measurements of nucleobases and related molecules in the 0.4- to 5.8-THz region using a GaP THz wave generator [J]. *Opt. Commun.*, 2005, **246**(1~3): 229~239
- 9 M. B. Johnston, D. M. Whittaker, A. Dowd *et al.*. Generation of high-power terahertz pulses in a prism[J]. *Opt. Lett.*, 2002, **27**(21): 1935~1937
- 10 Y. R. Shen. *Nonlinear Infrared Generation* [M]. New York: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1977. 7~200
- 11 Kalo Kawase, Manabu Sato, Tetsuo Taniuchi *et al.*. Coherent tunable THz-wave generation from LiNbO<sub>3</sub> with monolithic grating coupler[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1996, **68**(18): 2483~2485
- 12 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): 5237~5240  
张显斌,施 卫. 用短谐振腔结构优化 THz 电磁波参变振荡器的输出特性[J]. *物理学报*, 2006, **55**(10): 5237~5240
- 13 Zhang Xianbin, T. Ikari, Chen Yingli *et al.*. Analysis of THz electromagnetic wave output character based on high performance 85 mm short cavity optical parametric oscillator[J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(4): 616~620  
张显斌, T. Ikari, 陈英礼等. 高性能 85 mm 短腔光学参变振荡器的 THz 电磁波输出特性分析[J]. *光学学报*, 2006, **26**(4): 616~620
- 14 Kado Kawase, Jun-ichi Shikata, Hiromasa Ito. Terahertz wave parametric source[J]. *J. Phys. D*, 2001, **34**(1): R1~R14
- 15 Fang Junxin, Lu Dong. *Solid State Physics* [M]. Shanghai: Science and Technology Press, 2001. 122~123  
方俊鑫,陆 栋. *固体物理学*[M]. 上海:上海科学技术出版社, 2001. 122~123