2015年4月

文章编号: 2095-4980(2015)02-0189-06

基于 LiNbO3 光整流效应的高峰值功率太赫兹源

钟森城 a,b, 翟召辉 a,b, 朱礼国 a,b, 孟 坤 a,b, 刘 乔 a,b, 彭其先 a,b, 李泽仁 a,b

(中国工程物理研究院 a.流体物理研究所; b.微系统与太赫兹研究中心, 四川 绵阳 621999)

摘 要:基于光整流效应,通过倾斜泵浦光波前(TPFP)在铌酸锂晶体中实现相位匹配,是一种 有效的产生太赫兹辐射的方法。建立了一种更完备的基于波面倾斜的产生太赫兹波的理论模型, 用于分析不同泵浦光偏振下产生太赫兹波的转换效率。搭建了基于铌酸锂晶体光整流效应的高峰 值功率太赫兹源和太赫兹时域光谱系统,并利用太赫兹面阵探测器对获得的太赫兹辐射进行了分 析。结果表明,所获得的太赫兹辐射单脉冲峰值功率达到 0.56 MW,频谱宽度为 0.1 THz~2 THz, 转换效率为 0.56‰,与理论模拟结果相符。

关键词:太赫兹;高峰值功率;光整流;铌酸锂晶体;波面倾斜 中图分类号:TN012 文献标识码:A doi:10.11805/TKYDA201502.0189

High-peak-power terahertz pulses generated by optical rectification in LiNbO₃

ZHONG Sencheng^{a,b}, ZHAI Zhaohui^{a,b}, ZHU Liguo^{a,b}, MENG Kun^{a,b}, LIU Qiao^{a,b}, PENG Qixian^{a,b}, LI Zeren^{a,b} (a.Institute of Fluid Physics; b.Microsystems and Terahertz Research Center, China Academy of Engineering Physics, Mianyang Sichuan 621999, China)

Abstract: Optical rectification of laser pulses in LiNbO₃ by Tilted-Pulse-Front Pumping(TPFP) to fulfill phase match is a powerful way to generate terahertz pulses. A more detailed theoretical model for TPFP scheme is presented, which then is used to analyze the terahertz generation efficiency under different pump beam polarization states. A setup to generate high-peak-power terahertz pulses by optical rectification in LiNbO₃ and a time domain spectroscopy system are established. The property of generated terahertz pulses is analyzed by using terahertz camera, and the results indicate that the peak power of terahertz pulses with 0.1 THz-2 THz frequency is 0.56 MW, and the generation efficiency is 0.56%, which is consistent with the calculated result.

Key words: terahertz; high-peak-power; optical rectification; LiNbO3 crystal; tilted-pulse-front

太赫兹辐射通常是指频率为 0.1 THz~10 THz 的电磁辐射,随着太赫兹科学技术的迅猛发展,对太赫兹波的 产生和探测技术的研究受到了广泛的关注^[1]。2002 年,Hebling 等首次提出了利用反射式光栅倾斜泵浦光波前 (TPFP),从而在铌酸锂晶体中实现相位匹配,有效产生太赫兹辐射的方法^[2],AG Stepanov 等首次利用这种方法 产生了能量为 30 pJ 的太赫兹脉冲^[3]。随后,相继有研究者采用这种倾斜泵浦飞秒光波前的方法获得了更强的太 赫兹辐射^[4-6]。L Pálfalvi 等还提出了一种利用接触式透射光栅实现泵浦光波前的方法,这种方法有望进一步提高 太赫兹波的转换效率,从而获得能量更高的太赫兹脉冲^[7-9]。

随着实验获得的太赫兹波能量的提高,对倾斜泵浦光波前产生太赫兹辐射的理论研究也得到了广泛的关注。 J A Fülöp 等研究了光栅和透镜的成像误差导致产生的太赫兹波的强度包络的不对称性^[10],并进行了一些计算以 优化产生的太赫兹电场的强度^[11]; Michael I Bakunov 等研究了晶体界面的瞬态效应以探讨晶体中产生太赫兹波 的动力学性质^[12]。但目前已有的文献在计算太赫兹波转换效率时,都使用有效非线性系数 *d*_{eff} 而没有使用较为复 杂的非线性电极化率张量,因而不能用于计算不同泵浦光偏振下产生太赫兹波的性质。

实验和理论计算结果表明,倾斜泵浦飞秒光波前产生太赫兹辐射方法有可能产生单脉冲能量达到毫焦(mJ)量级的超短太赫兹波^[11],这种高峰值功率的太赫兹源可应用于许多科学研究和工业应用,如,太赫兹脉冲能量的

增加使其可用于太赫兹非线性响应的研究^[13],利用太赫兹泵浦-太赫兹探测技术可以进行半导体超快载流子动力 学性质的研究^[14-16]。

由此可见,倾斜泵浦光波前在铌酸锂晶体中实现相位匹配,是一种有效且具有广泛应用前景的产生太赫兹辐射的方法,但目前国内还没有见到相关研究的报道。本文首先采用铌酸锂晶体的非线性电极化率张量建立了一种 更完备的基于波面倾斜产生太赫兹波的理论模型,并模拟分析了不同泵浦光偏振下产生太赫兹波的转换效率;然 后利用飞秒激光器搭建了基于铌酸锂晶体光整流效应的高峰值功率太赫兹源和太赫兹时域光谱系统,并利用太赫 兹面阵探测器对获得的太赫兹脉冲辐射进行了分析;最后对理论和实验结果进行讨论,说明利用这种方法产生吉 瓦(GW)量级高峰值功率太赫兹源的可能性。本文的理论和实验研究为后续 GW 量级高峰值功率太赫兹源的研究 奠定了基础。

1 理论模型

基于波面倾斜的高峰值功率太赫兹源是一种基于光整流效应的太赫兹源。光整流效应是一种非线性效应,是 利用超短激光脉冲与非线性介质相互作用而产生低频电极化场,从而在晶体表面辐射出太赫兹波的方式。光整流 效应产生的太赫兹波的能量来源于激光脉冲的能量,转换效率主要依赖于材料的电光系数和相位匹配条件。传统 的基于光整流效应的光学太赫兹源一般都采用容易实现共线相位匹配的非线性晶体作为工作介质,如 ZnTe 晶体 等,但这些晶体的电光系数相对较低,从而限制了激光转换为太赫兹波的效率。

基于波面倾斜的太赫兹源采用高电光系数的非线性晶体作为工作介质,其核心原理在于通过倾斜泵浦光波 前,并使其与产生的太赫兹波以一定的角度在晶体中传播,从而实现非共线的相位匹配,基本原理如图1所示。 利用光栅及光学系统使泵浦飞秒激光在非线性晶体中传播时的波前倾斜为一定角度γ,若泵浦光、太赫兹波在晶

体中的传播速度分别为 v_{ab}, ν,则相位匹配条件为: v_{ab} cosγ=v。对于目前这种方法最常用到的铌酸锂晶体而 言,倾斜角γ≈63°。将晶体加工为如图 1 所示的楔形形状, 则太赫兹波的出射方向将垂直于楔形晶体斜面,获得的太 赫兹波是一个准平面波。由于这种基于波面倾斜的太赫兹 源采用具有高电光系数的非线性晶体实现了相位匹配,因 而可以大大提高激光转换为太赫兹波的效率。





Fig.1 Schematic of the THz pulse generation setup for the TPFP 图 1 倾斜泵浦光波前产生太赫兹波的系统原理示意图



(a) the geometry(b) the coordinatesFig.2 Geometry of tilted-pulse-front pumping THz generation(a) and the coordinates used(b)图 2 倾斜泵浦飞秒光波前太赫兹源原理图及采用的坐标系

为了分析倾斜泵浦飞秒光波前的太赫兹源系统产生太赫兹波的效率,作者进行了理论模拟研究。基于波面倾斜的高峰值功率太赫兹源原理图及采用的坐标系如图2所示,其中,x,y和z分别对应晶轴方向[1,0,0] $\rightarrow x$, [0,1,0] $\rightarrow y$, [0,0,1] $\rightarrow z$, z'是太赫兹波出射方向, θ , φ 是泵浦光偏振电场的方位角, β , ϕ 是太赫兹波偏振电场的方位角。根据麦克斯韦方程,慢变振幅近似下太赫兹电场E(z')的一维方程为^[10,17]:

$$\frac{\partial E(z')}{\partial z'} = -\frac{\mathrm{i}\omega}{2\varepsilon_0 cn} P_{\rm NL} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\Delta kz'} - \frac{1}{2} \alpha E(z') \tag{1}$$

式中: ω 是太赫兹波的角频率; ε_0 , c是真空介电常数和光速;n, α 是晶体在太赫兹波段的折射率和吸收系数; Δk 是波矢失配量; $P_{\rm NL}$ 是介质极化强度,可以用非线性极化率张量表示。铌酸锂晶体属于 3 m 点群,其二阶非线性

极化率张量为:

$$d_{il} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{15} & d_{15} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$
(2)

 $\begin{bmatrix} E^2 \end{bmatrix}$

若一束线性偏振的泵浦激光入射到铌酸锂晶体上,其电场强度 E 可表示为: $E = E_0(\sin \varphi, \sin \theta \cos \varphi, \cos \theta \cos \varphi)$

(3)

非线性极化强度 P 可表示为:

$$\begin{bmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{bmatrix} = 2\varepsilon_0 \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{15} & d_{15} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} L_x \\ E_y^2 \\ E_z^2 \\ 2E_yE_z \\ 2E_xE_z \\ 2E_xE_y \end{bmatrix}$$
(4)

展开后得到:

$$P_{x} = 2\varepsilon_{0}E_{0}^{2}[(d_{15}\cos\theta - d_{22}\sin\theta)\sin 2\varphi]$$

$$P_{y} = 2\varepsilon_{0}E_{0}^{2}[-d_{22}\sin^{2}\varphi + (d_{22}\sin^{2}\theta + d_{15}\sin 2\theta)\cos^{2}\varphi]$$

$$P_{z} = 2\varepsilon_{0}E_{0}^{2}[d_{15}\sin^{2}\varphi + (d_{15}\sin^{2}\theta + d_{33}\cos^{2}\theta)\cos^{2}\varphi]$$
(5)

非线性极化强度 P_{NL} 可表示为:

$$P_{\rm NL} = (P_x^2 + P_y^2 + P_z^2)^{1/2} = 2\varepsilon_0 d_{\rm eff} E_0^2$$
(6)

式中 $d_{\text{eff}} = (P_x^2 + P_y^2 + P_z^2)^{1/2} / (2\varepsilon_0 E_0^2)$, 由式(1)可解得:

$$E(z') = \frac{iA}{i\Delta k + \frac{1}{2}\alpha} (e^{-\frac{1}{2}\alpha z'} - e^{i\Delta k z'})$$
(7)

式中 $A = \frac{\omega d_{\text{eff}}}{cn} E_0^2$ 。相位匹配条件下,即^[10]:

$$\Delta k = k(\omega) + k(\omega_0) - k(\omega_0 + \omega) \approx \frac{\omega}{c} \left(n - \frac{n_{\omega_0}}{\cos \gamma}\right) = 0$$
(8)

式中: γ为泵浦光波前倾斜的角度; n_a是晶体在泵浦光波段的折射率。则太赫兹波电场强度 E(z')为:

$$E(z') = \frac{2iA}{\alpha} (e^{-\frac{1}{2}\alpha z'} - 1)$$
(9)

因为光强为 $I = \frac{1}{2} \varepsilon_0 cn |E|^2$, 由式(9)可以得到太赫兹波的转换效率为:

$$\eta = \frac{8\omega^2 d_{\text{eff}}^2 I_{\omega_0}}{\varepsilon_0 n n_{\omega_0}^2 c^3 \alpha^2} (e^{-\frac{1}{2}\alpha z'} - 1)^2 = \begin{cases} \frac{8\omega^2 d_{\text{eff}}^2 P_{\omega_0}}{\varepsilon_0 n n_{\omega_0}^2 c^3 \alpha^2 \pi (d/2)^2} (e^{-\frac{1}{2}\alpha d \csc \gamma} - 1)^2 e^{2\alpha x' \cot \gamma}, & x' < 0\\ \frac{8\omega^2 d_{\text{eff}}^2 P_{\omega_0}}{\varepsilon_0 n n_{\omega_0}^2 c^3 \alpha^2 (d/2)^2} (e^{-\frac{1}{2}\alpha (d \csc \gamma - x' \cot \gamma)} - 1)^2, & x' \ge 0 \end{cases}$$
(10)

式中用到了关系式 $I_{\omega_0} = \frac{P_{\omega_0}}{\pi (d/2)^2}$, P_{ω_0} , d 是泵浦光功率和光束直径, x'是垂直于 z'的坐标轴(如图 2 所示)。

2 模拟计算与分析

铌酸锂晶体的电光系数为 $\gamma_{31} = -4.3$, $\gamma_{22} = 2.1$, $\gamma_{33} = -30.9^{[18-20]}$, 再根据文献[18,21]中的式(6)计算得到光整流 非线性光学系数 d_{ij} (如表 1 中 2~4 列)。根据实验系统,取模拟计算中使用的相关参数如表 1 所示^[18]。模拟结果 如图 3 所示。

当泵浦光垂直于 yoz 面入射时,其电场 E 在 yoz 面内, $\varphi = 0$,则 $P_{NL} 与 \theta$ 的变化关系如图 3(a)所示。当 $\theta = \pm n\pi$, $n = 0, 1, 2, 3, \cdots$ 时, P_{NL} 有最大值,说明当泵浦光电场矢量方向与晶体光轴方向 z 平行时,产生的太赫兹波

场强度具有最大值。图 3(b)是不同 θ条件下,楔形铌酸锂晶体沿斜面方向 x'的太赫兹波转换效率,可以看到, 在 x'=0时,转换效率有最大值,约为 0.5‰。



Fig.3 Variation of the P_{NL} and the THz generation efficiency at different pump beam polarization states 图 3 不同泵浦光偏振态下 P_{NL} 和太赫兹转换效率的变化

3 实验研究

图 4 为搭建的基于波面倾斜的高峰值功率太赫 兹源及时域光谱系统的主要光路图,泵浦光通过反射 光栅(1 200 刻线/mm,闪耀波长 800 nm,闪耀角 28.7°) 和 2 个透镜(L1: 焦距 175 mm, 直径 50.8 mm; L2: 焦距 50 mm, 直径 25.4 mm)使其在铌酸锂晶体(sLN, 掺 MgO: 5%)中的波前倾斜为 63°,产生的太赫兹波 经抛面镜(PM1)聚焦后在碲化锌晶体(ZnTe)上对探测 光的偏振态进行调制,调制后的探测光经 $\lambda/4$ 波片和 偏振分光梭镜(P)分束后,用平衡探测器(Balanced Detector, BD)进行探测。所用激光器的单脉冲能量 为 1 mJ,脉宽为 40 fs,重频为 1 kHz,经过反射镜、



Fig.4 THz pulse generation setup and time domain spectroscopy system for the tilted-pump-pulse-front scheme

图 4 基于波面倾斜的高峰值功率太赫兹源及时域光谱系统光路图

光栅等光学元件衰减后入射到晶体表面的泵浦光单脉冲能量约为 0.36 mJ, 光束直径约为 2 mm。

利用 NEC 公司的太赫兹面阵探测器(型号 IRV-T0831C)在距离铌酸锂晶体太赫兹波出射表面 5 cm 处对产生的 太赫兹波进行探测,得到的太赫兹波二维图像如图 5(a)所示,图 5(b)是太赫兹波二维图像的强度三维图,太赫兹 光斑为 TEM00 模,光斑质量很好;当泵浦光偏振方向与晶体光轴方向平行(实验中都垂直于光学平台)时,产生 的太赫兹波强度具有最大值,与理论相符。图 5(c)为时域光谱系统探测到的太赫兹时域波形,插图为太赫兹波傅 里叶频谱,可以看到,所获得的太赫兹频谱宽度约为 0.1 THz~2 THz。图 5(d)为所获得的太赫兹波图像的强度包 络及相应的高斯拟合曲线,可以看到,实测结果与高斯拟合曲线符合得很好。

实验中使用的太赫兹面阵探测器的响应已利用频率为 3 THz 的量子级联激光器(Quantum Cascade Laser, QCL) 太赫兹源进行了标定,根据其在不同波长的响应曲线得到,该探测器在 1 THz 的响应约为 270 pW/灰度,探测器 镜头透镜透过率为 0.49,太赫兹滤波片的透过率为 0.86;去除背景后所获得的太赫兹波成像的总灰度值为 3.5×10⁵,计算得到获得的太赫兹辐射的平均功率约为 224 μW,单脉冲能量为 0.224 μJ,转换效率约为 0.56‰,单脉冲太 赫兹波强度半高宽约为 0.4 ps,峰值功率约为 0.56 MW。实验结果与理论模拟结果相符。

4 结论与分析

采用铌酸锂晶体的非线性电极化率张量建立了一种更完备的基于波面倾斜产生太赫兹波的理论模型,并模拟 分析了不同泵浦光偏振下产生太赫兹波的转换效率。利用飞秒激光器搭建了基于铌酸锂晶体光整流效应的高峰值 功率太赫兹源和太赫兹时域光谱系统,并用太赫兹面阵探测器对获得的太赫兹脉冲辐射进行了分析,获得了太赫 兹波的二维图像和三维强度图,以及太赫兹波的频谱和强度包络。结果表明所获得的太赫兹辐射单脉冲峰值功率 达到 0.56 MW,频谱宽度为 0.1 THz~2 THz,转换效率约为 0.56‰。



Fig.5 Detection results of the generated terahertz wave 图 5 产生太赫兹波的探测结果

由于基于波面倾斜的高峰值功率太赫兹源是一种基于二阶非线性效应的太赫兹源,产生的太赫兹脉冲能量与 泵浦光能量的平方成正比,在低于铌酸锂晶体飞秒激光损伤阈值(根据文献[22]计算,约为156 mJ/cm²)的前提下, 提高泵浦光能量能够极大地提高太赫兹波的转换效率和产生的太赫兹波的能量。另外,降低工作温度能够有效降 低铌酸锂晶体对太赫兹波的吸收,从而提高太赫兹波的转换效率。因此,基于铌酸锂晶体的倾斜泵浦飞秒光波前 的太赫兹源极有可能获得峰值功率达到 GW 量级的高峰值功率的太赫兹源。

参考文献:

- KANG Shengwu, WANG Jiping, LIU Kan, et al. Analysis of the spectral characters of terahertz-wave[J]. Acta Optica Sinica, 2012, 32(6):0612001.
- [2] Hebling J,Almási G,Kozma I Z,et al. Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation[J]. Optics Express, 2002,10(21):1161-1166.
- [3] Stepanov A G, Hebling J, Kuhl J. Efficient generation of subpicosecond terahertz radiation by phase-matched optical rectification using ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts[J]. Applied Physics Letters, 2003,83(15):3000-3002.
- [4] Yeh K L,Hoffmann M C,Hebling J,et al. Generation of 10 μJ ultrashort terahertz pulses by optical rectification[J]. Applied Physics Letters, 2007,90(17):171121-171121-3.
- [5] Hirori H,Doi A,Blanchard F,et al. Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO₃[J]. Applied Physics Letters, 2011,98(9):091106-091106-3.
- [6] Fülöp J A,Pálfalvi L,Klingebiel S,et al. Generation of sub-mJ terahertz pulses by optical rectification[J]. Optics Letters, 2012,37(4):557-559.
- [7] Pálfalvi L,Fülöp J A,Almási G,et al. Novel setups for extremely high power single-cycle terahertz pulse generation by optical rectification[J]. Applied Physics Letters, 2008,92(17):171107-171107-3.
- [8] Nagashima K,Kosuge A. Design of rectangular transmission gratings fabricated in LiNbO₃ for high-power terahertz-wave generation[J]. Japanese Journal of Applied Physics, 2010,49(12R):122504(1-5).
- [9] Ollmann Z, Hebling J, Almási G. Design of a contact grating setup for mJ-energy THz pulse generation by optical rectification[J]. Applied Physics B, 2012,108(4):821-826.

[11] Fülöp J A,Pálfalvi L,Ollmann Z,et al. Towards generation of mJ-level ultrashort THz pulses by optical rectification[C]// 2012 Conference on Lasers and Electro-Optics(CLEO). San Jose,CA:IEEE, 2012:1-2.

- [12] Bakunov M I,Bodrov S B,Mashkovich E A. Terahertz generation with tilted-front laser pulses: dynamic theory for low-absorbing crystals[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2011,28(7):1724-1734.
- [13] Gaal P,Reimann K,Woerner M,et al. Nonlinear terahertz response of n-type GaAs[C]// 2006 Lasers and Electro-Optics, and Quantum Electronics and Laser Science Conference. Long Beach,CA:IEEE, 2006:1-2.
- [14] Razzari L,Su F H,Sharma G,et al. Nonlinear ultrafast modulation of the optical absorption of intense few-cycle terahertz pulses in n-doped semiconductors[J]. Physical Review B, 2009,79(19):193204.
- [15] Hebling J,Hoffmann M C,Hwang H Y,et al. Observation of nonequilibrium carrier distribution in Ge, Si and GaAs by terahertz pump-terahertz probe measurements[J]. Physical Review B, 2010,81(3):035201.
- [16] Hirori H,Nagai M,Tanaka K. Excitonic interactions with intense terahertz pulses in ZnSe/ZnMgSe multiple quantum wells[J]. Physical Review B, 2010,81(8):081305.
- [17] Vodopyanov K L. Optical generation of narrow-band terahertz packets in periodically-inverted electro-optic crystals: conversion efficiency and optimal laser pulse format[J]. Optics Express, 2006,14(6):2263-2276.
- [18] Hebling J,Stepanov A G,Almási G,et al. Tunable THz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts[J]. Applied Physics B, 2004,78(5):593-599.
- [19] Miller R C,Norland W A,Bridenbaugh P M. Dependence of second-harmonic-generation coefficients of LiNbO₃ on melt composition[J]. Journal of Applied Physics, 1971,42(11):4145-4147.
- [20] YAN Jiang,LI Haowen,YANG Xuelin, et al. Second-order nonlinear optical coefficients measurement of LiNbO₃ by non-phase-matched second-harmonic generation in uniaxial crystal sphere[J]. Laser Journal, 2000,21(2):14-16.
- [21] Hebling J,Yeh K L,Hoffmann M C,et al. Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2008,25(7):B6-B19.
- [22] Stepanov A G,Kuhl J. Scaling up the energy of THz pulses created by optical rectification[J]. Optics Express, 2005,13(15):5762-5768.

作者简介:



钟森城(1986-),男,广东省梅州市人,硕 士,主要研究方向为高峰值功率太赫兹脉冲 源.email:344199436@qq.com.

朱礼国(1983-),男,四川省绵竹县人,博士,主要研究 方向为太赫兹技术、快光电技术及其在武器物理和生物医学 中的应用.

翟召辉(1985-),男,河北省晋州市人,博士,助理研究员,主要研究方向为瞬态太赫兹光谱成像及诊断技术.

孟 坤(1984-),山东省青岛市人,硕士, 主要研究方向为太赫兹技术及其在生物医学中 的应用.

刘 乔(1973-),四川省泸州市人,博士, 主要研究方向为太赫兹光谱成像技术及其在武 器物理和生物医学中的应用.

彭其先(1970-),四川省绵竹市人,博士, 主要研究方向为快光电学与应用.

李泽仁(1961-),四川省三台市人,博士, 主要研究方向为光电测试系统及应用.