

文章编号: 2095-4980(2018)04-0576-09

GaP, GaAs 和 PPLN 晶体级联差频产生太赫兹辐射

黄俊滔, 饶志明, 谢芳森*

(江西师范大学 物理与通信电子学院, 江西 南昌 330022)

摘要: 研究周期极化磷化镓晶体(GaP)、砷化镓晶体(GaAs)和周期极化铌酸锂晶体(PPLN)准相位匹配级联差频产生太赫兹辐射, 相较于差频过程, 级联过程太赫兹辐射输出功率增大9.5倍。通过分析三波耦合方程, 计算并比较晶体的波矢失配量、极化周期和太赫兹功率, 结果显示, 基于GaP晶体产生的太赫兹功率略大于GaAs晶体输出的功率; GaAs晶体的极化周期最小; PPLN晶体的波矢失配量和极化周期取值范围最小, 而输出的太赫兹功率和转换效率最高。建立基于周期极化掺氧化镁铌酸锂晶体(MgO:PPLN)准相位匹配原理的宽调谐激光系统, 分析吸收因子对输出太赫兹功率的影响, 计算级联差频峰值功率和转换效率。十五阶峰值功率3.72 MW, 泵浦光总能量到太赫兹辐射能量的转换效率是3.72%。

关键词: 太赫兹; 级联过程; 差频产生; 周期性极化晶体; 准相位匹配

中图分类号: TN201; O411

文献标志码: A

doi: 10.11805/TKYDA201804.0576

Cascaded difference-frequency generation for THz in GaP, GaAs and PPLN crystals

HUANG Juntao, RAO Zhiming, XIE Fangsen*

(School of Physics and Communication Electronics, Jiangxi Normal University, Nanchang Jiangxi 330022, China)

Abstract: Terahertz(THz) generation by periodically poled Gallium Phosphide(GaP) crystal, periodically poled Gallium Arsenide(GaAs) crystal, and Periodically Poled Lithium Niobate(PPLN) crystal based on Quasi-Phase-Matched(QPM) cascaded Difference-Frequency Generation(DFG) is studied. Compared to DFG, THz power in cascading processes increase by 9.5 times, the cascading process contributes to efficient THz generation. The wave vector mismatch, polarization period and terahertz power of three crystals are calculated from the coupled wave equations, and the results are compared. The results show that terahertz power generated by GaP crystal is slightly higher than that generated by GaAs crystal. The polarization period of GaAs crystal is the smallest; so are the wave vector mismatch and polarization period range of PPLN crystal, however, its conversion efficiency is the highest. A widely tunable laser source system based on the general theory of QPM in MgO:PPLN crystal has been developed. Through analyzing the absorption factor on its output of the terahertz power in theory, the conversion efficiency of cascaded DFG is obtained. The infrared radiation is produced from cascading orders 15 with a maximum power of 3.72 MW. A maximum output conversion efficiency of 3.72% is generated. The research shows significance in experiments on cascaded DFG for terahertz radiation using periodically polarized GaP, periodically polarized GaAs and PPLN crystals.

Keywords: terahertz; cascaded processes; Difference-Frequency Generation(DFG); periodically polarized crystal; Quasi-Phase-Matched(QPM)

太赫兹(THz)辐射是波长(频率)范围在 0.03~3 mm(0.1~10 THz)、典型频率可在 0.5 THz 的电磁波, 被称为太赫兹空隙(THz Gap), 位于红外波与微波之间。目前, 太赫兹技术在波谱、成像、通信、雷达、天文、气象、石油、

收稿日期: 2017-10-22; 修回日期: 2017-12-07

基金项目: 江西省自然科学基金资助项目(20161BAB202052); 博士启动基金资助项目(6398); 教育厅科技资助项目(GJJ160305)

*通信作者: 谢芳森 email: xiefangsen@163.com

化工、军事、安全、国防和航空航天等领域均有重大的科研价值和广阔的应用前景^[1-2], 如太赫兹超材料和超表面器件^[3]、太赫兹光谱分析煤炭物质^[4]、太赫兹时域光谱检测^[5]、太赫兹波大气传输衰减特性^[6]、太赫兹雷达成像^[7]、太赫兹无线通信^[8]和太赫兹卫星通信^[9]。根据产生太赫兹波的机理可分为通过频率下转换实现的光学方法和通过频率上转换实现的电子学方法。光学方法中, 非线性光学差频(DFG)^[10-13]技术利用频率相近的两束高功率光束通过在晶体中作用, 差频具有调谐广、功率高、无阈值、相干性好和方案简易等优势。根据 DFG 的基本原理, DFG 的能量转换效率即太赫兹输出能量相对其输入能量的比值仅为 0.33% (ω_T/ω_1) , 实际实验中远低于此数值^[14], 实现高效率光-太赫兹(light-Terahertz)能量转换是困扰科研工作者的一大难题。

准相位匹配(QPM)^[13-15]原理最早由 Armstrong 等提出^[16], 基于准相位匹配存在共线和非共线光波相互作用, 抵消了混频时产生的相位失配, 可以解决各向同性晶体如周期极化磷化镓(GaP)晶体、周期极化砷化镓(GaAs)晶体和周期极化铌酸锂(PPLN)晶体差频过程中相位匹配的问题, 最大程度利用了这些晶体二阶非线性系数大和晶体吸收因子小等优点, 可以有效提高太赫兹的转换效率。近年来, 科研工作者提出了一些利用级联差频获得高能量太赫兹辐射源^[17]的报道。2008 年, 美国斯坦福大学的 SCHAAR 等发表了利用 GaAs 晶体基于准相位匹配技术的差频产生太赫兹波^[17], 实验中检测到斯托克斯光与反斯托克斯光, 证实了级联过程。2015 年德国汉堡大学的 RAVI 等提出了在低温冷却周期极化铌酸锂中, 基于光谱级联光学参量放大产生太赫兹辐射(THz generation based on spectrally Cascaded Optical Parametric Amplification, THz-COPA)的方法^[18], THz-COPA 过程显现出明显不同于光参量放大(Optical Parametric Amplification, OPA)的物理特性, 是一种基于级联效应的高能太赫兹产生技术。2016 年国内的 LI 等报道了基于 GaP 晶体级联差频的共线相位匹配方案, 报道中提出 11 阶级联过程的太赫兹辐射强度增至 5.48^[19]。级联过程是由一阶高频窄带泵浦光和低频光不断重复地进行能量互转换而形成一阶、二阶、三阶以及 m 阶连续高阶光波的过程^[16-20]。级联过程由于电磁波频谱的变化会导致相位匹配条件的变化, 唯有当较宽范围内泵浦光波长的波矢失配量很小甚至趋于零时, 才能满足级联效应的产生条件, 此时会有显著的级联过程。级联差频提高了从泵浦光到太赫兹辐射的能量转换效率。

本文研究并对比了 3 种周期性极化 GaP,GaAs 和 PPLN 晶体 DFG 太赫兹辐射的波矢失配量、极化周期和太赫兹功率。根据三波耦合方程以及级联 DFG 的基本理论, 构建基于周期性极化掺氧化镁铌酸锂(MgO:PPLN)晶体准相位匹配原理的级联差频激光系统, 研究分析了级联斯托克斯光和级联反斯托克斯光相互作用过程的太赫兹功率和转换效率。

1 级联差频的原理及太赫兹调谐特性

图 1 中激光器 L 为双波长泵浦光的发射源, 从 L 中输出的高频泵浦光 (ω_m) 和低频泵浦光 (ω_{m+1}) 经过非线性光学晶体 M 的路径是 l_{cas} , 获得太赫兹范围内的频率差光束 $\omega_m - \omega_{m+1} = \omega_T$ 。若 ω_{m+1} 与 ω_T 差频满足相位匹配条件, 则继续 DFG 低频泵浦光 ω_{m+2} , 同理 ω_{m-1} 是 ω_m 与 ω_T 的 DFG, 激光在三度空间中运动的长宽高分别为 $[1\ 1\ 0]$, $[\bar{1}\ 1\ 0]$ 和 $[0\ 0\ 1]$ 。

根据级联 DFG 的基本原理^[16-20], 级联过程中有斯托克斯光与反斯托克斯光, 斯托克斯光中的 ω_T 是 ω_m 和 ω_{m+1} 相互作用产生, 较高频率泵浦光子放大低频泵浦光子。若差频过程中增益较高, 放大后的泵浦光又作为一个新的高频泵浦光与太赫兹波相互作用再次产生一个新较低频率泵浦光 ω_{m+2} 。同时, 后者的太赫兹光子和泵浦光子相互作用, 从而产生一个较高频率的 ω_{m-1} 。以此类推, 满足相位匹配条件下, 级联差频过程的斯托克斯光和反斯托克斯光可以继续任意高阶过程中相互作用, 形成一系列的太赫兹光波。

根据 DFG 非线性光学三波耦合方程^[21-22], 泵浦光经过周期性极化晶体多次级联 DFG 太赫兹波。 f_0 是一阶泵浦光频率, m 表示阶数, 它是一个整数, f_m 是 m 阶泵浦光频率, f_T 是太赫兹频率, 且三者满足关系 $f_m = f_0 + mf_T$, A_m 是泵浦光复振幅, A_T 是太赫兹复振幅:

$$\frac{dA_m(z)}{dz} = -\frac{\alpha_m}{2} A_m - i \left[\frac{2f_{m-1}\chi_0^{(2)}}{cn_{m-1}} A_{m-1} A_T^* e^{-i(k_{m-1} - k_{m-2} - k_T - 2\pi\Lambda^1)z} + \frac{2f_m\chi_0^{(2)}}{cn_m} A_{m+1} A_T e^{-i(k_m - k_{m-1} - k_T - 2\pi\Lambda^1)z} \right] \quad (1)$$

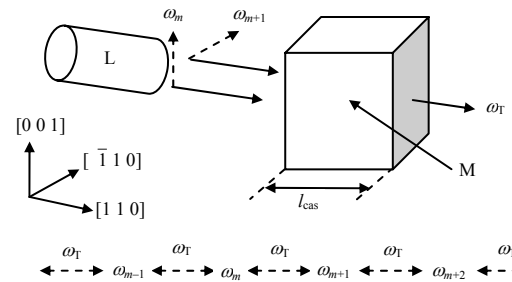


Fig.1 Schematic diagram of the cascaded DFG terahertz radiation
图 1 级联差频产生太赫兹辐射源的原理示意图

$$\frac{dA_T(z)}{dz} = -\frac{\alpha_T}{2} A_T - i \frac{2f_T \chi_0^{(2)}}{cn_T} \sum_{m=-\infty}^{\infty} A_m A_{m+1}^* e^{-i(k_m - k_{m+1} - k_T - 2\pi A^{-1})z} \quad (2)$$

式中： α_m 和 α_T 是 ω_m 和 ω_T 的吸收系数； $\chi_0^{(2)}$ 是二阶非线性极化率； $c=3 \times 10^8$ m/s 是光在真空中的速度； n_m 是泵浦光的折射率； n_T 是 THz 的折射率； A 是极化周期。式(1)中右边(Right Hand Side, RHS)第 1 项对应于 DFG 的 $(m+1)^{\text{th}}$ 阶泵浦光与太赫兹波相互作用, RHS 第 2 项相当于 $(m-1)^{\text{th}}$ 阶泵浦光与太赫兹辐射的和频产生(Sum-Frequency Generation, SFG)。式(2)中, RHS 第 1 项对应于太赫兹吸收, 而第 2 项为级联差频产生太赫兹辐射的和, 式(1)和式(2)包括光谱波段区和太赫兹吸收。为了实现级联差频的有效输出, 在式(1)和式(2)中三波耦合过程 QPM 的条件为:

$$\frac{1}{\lambda_m} - \frac{1}{\lambda_{m+1}} = \frac{1}{\lambda_T} \quad (3)$$

$$k_m - k_{m+1} - k_T = k_A \quad (4)$$

式中： λ_m , λ_{m+1} 和 λ_T 分别是 ω_m , ω_{m+1} 和 ω_T 的波长； $k_m = 2\pi n_m / \lambda_m$ 和 $k_{m+1} = 2\pi n_{m+1} / \lambda_{m+1}$ 是 ω_m 和 ω_{m+1} 的波矢； $k_T = 2\pi n_T / \lambda_T$ 是 ω_T 的波矢； $k_A = 2\pi / \lambda_A$ 是周期性极化晶体的倒格矢。

光谱由不同频率为中心的窄带波组成。频率分布是窄带的, 在频率空间中复振幅近似为分立谱(或离散模式), 离散模式下具有标量振幅(E_m)的特性, 即 $E_m(z) = A_m(z)e^{-ik_m z}$ 且 $E_T(z) = A_T(z)e^{-ik_T z}$, 二者相位角满足 $\Phi_m = \varphi_m - \varphi_{m+1} = \pi/2$, 可得离散模式下的泵浦光和太赫兹振幅表示形式:

$$\frac{dE_m(z)}{dz} = \frac{-\alpha_m}{2} E_m + \frac{\varepsilon_0 \omega_{m-1}}{2} \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_{m-1}} \right)^{\frac{1}{2}} (2d) E_{m-1} E_T \cos(\Delta k_{m-1}) - \frac{\varepsilon_0 \omega_m}{2} \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_m} \right)^{\frac{1}{2}} E_{m+1} E_T \cos(\Delta k_m) \quad (5)$$

$$\frac{dE_T(z)}{dz} = -\frac{\alpha_T}{2} E_T + \frac{\varepsilon_0 \omega_T}{2} \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_T} \right)^{\frac{1}{2}} (2d) \sum_{m=-\infty}^{\infty} E_m E_{m+1} \cos(\Delta k_m) \quad (6)$$

式中： $\mu_0=4\pi \times 10^{-7}$ N·A⁻² 为真空磁导率； $\varepsilon_T = \varepsilon_r \varepsilon_0$ 为太赫兹的介电常数， ε_r 为相对介电常数， $\varepsilon_0=8.854 187 817 \times 10^{12}$ F/m 为真空介电常数； d 是有效非线性系数； Δk_m 为 QPM 的波矢失配量, 求解式(3)和式(4)可得:

$$\Delta k_m = k_m - k_{m+1} - k_T - \frac{2\pi j}{A} \quad (7)$$

式中 j 是相位匹配的阶数。由式(7), 当 $\Delta k_m=0$ 时, 参考周期性极化晶体的色散公式, 极化周期(A)可以表示为:

$$A = \frac{j}{\frac{n_m}{\lambda_m} - \frac{n_{m+1}}{\lambda_{m+1}} - \frac{n_T}{\lambda_T}} \quad (8)$$

式(5)和式(6)是描述基于级联差频现象的简化方程。求解三波耦合方程^[23]以及 QPM 的条件, 对 z 进行积分运算, 可得理想情况下太赫兹功率(P_T)表达式:

$$P_T(l_{\text{cas}}) = \frac{1}{2} \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \right)^{\frac{1}{2}} \sum_{m=-\infty}^{\infty} \frac{(2\omega_T d)^2}{n_m n_{m+1} n_T c^2} \frac{P_m P_{m+1}}{A} \frac{\sin^2 \left(\frac{1}{2} \Delta k_m l_{\text{cas}} \right)}{\left(\frac{1}{2} \Delta k_m l_{\text{cas}} \right)^2} l_{\text{cas}} \quad (9)$$

式中： P_m 和 P_{m+1} 是两束泵浦光的功率； A 是光束横截面的面积； l_{cas} 是晶体长度, 通过对纵向波矢失配量求倒数可得:

$$l_{\text{cas}} = \frac{j\pi}{k_m - k_{m+1} - k_T} \quad (10)$$

结合式(8)和式(10)可知 A 的数值是晶体长度(l_{cas})数值的 2 倍, 即 $A = 2l_{\text{cas}}$, 且 A 和 l_{cas} 随着两束泵浦光波长(λ_m 和 λ_{m+1})的变化而变化。为了得到高能量太赫兹辐射源, 必须考虑太赫兹辐射的转换效率(η)。由表达式(9), η 用归一化级联差频转换效率表示^[24]:

$$\eta = \frac{P_T}{P_m P_{m+1} l_{\text{cas}}} \propto \sin^2 \left(\frac{1}{2} \Delta k_m l_{\text{cas}} \right) \quad (11)$$

在式(11)中, 级联差频过程的转换效率正比于泵浦光功率和有效非线性系数的平方, 为获得高能量太赫兹辐射源, 应当选择非线性系数高且光损阈值高的非线性晶体。常用的差频晶体有双折射晶体(GaSe, ZnGeP2)、各向同性晶体(GaP, GaAs)以及 PPLN 晶体。对于 GaSe 和 ZnGeP2 晶体^[25], 由于介质的各向异性, 受偏振条件及参量

的限制, 不满足级联效应条件。不同于双折射晶体, 各向同性晶体满足级联效应条件, GaP, GaAs 和 PPLN 是各向同性晶体相应的周期性极化晶体。周期结构 GaP, GaAs 和 PPLN 晶体具有优良的光电特性(高非线性系数), 是研究广泛、技术成熟的晶体, 以色散补偿实现相位匹配的 GaP, GaAs 和 PPLN 晶体为例, 对比分析太赫兹辐射的产生原理。

2 周期结构 GaP, GaAs 和 PPLN 晶体产生太赫兹辐射的对比分析

2.1 波矢失配量

当前 DFG 已被广泛用于太赫兹辐射产生, 根据晶体的 Sellmeier 色散方程^[26-28], 周期结构 GaP 和 GaAs 晶体在光学和 THz 波段的折射率表达式为:

$$n_m^2(\lambda) = 1 + \frac{1.39\lambda^2}{\lambda^2 - 0.172\lambda^2} + \frac{4.131\lambda^2}{\lambda^2 - 0.234\lambda^2} + \frac{2.57\lambda^2}{\lambda^2 - 0.345\lambda^2} + \frac{2.056\lambda^2}{\lambda^2 - 27.52\lambda^2} \quad (12)$$

$$n_r^2(\lambda) = 5.372514 + \frac{27.83972}{0.4431307^{-2} - \lambda^{-2}} + \frac{0.031764}{0.8746453^{-2} - \lambda^{-2}} + \frac{0.00143636}{36.9166^{-2} - \lambda^{-2}} \quad (13)$$

PPLN 晶体在光学和 THz 波段的折射率表达式为:

$$n_m^2(\lambda) = G + 2.605 \times 10^{-7} T^2 + \frac{0.970 \times 10^5 + 2.7 \times 10^{-2} T^2}{\lambda_m^2 - (2.01 \times 10^2 + 5.4 \times 10^{-5} T^2)^2} - 2.24 \times 10^{-8} \lambda_m^2 \quad (14)$$

$$n_r^2(\lambda) = 24.326 + 2.14 \times 10^{-5} f + \frac{31298 + 0.15824f}{\lambda_r^2 - (48.084 + 3.097 \times 10^{-5} f)^2} \quad (15)$$

式中: 变量 $G = 4.5567 - 2.1432 \times 10^4 T_c^2 - 4.07 \times 10^{-7} T_c^2$; 温度变量 T_c 的单位是 $^{\circ}\text{C}$ 。利用掺杂氧化镁的周期性极化铌酸锂晶体来进行光学矫正规避, 查表知, 30°C 时对应的参数值为 4.5599。变量 $f = (T - 297.65)(T + 297.67)$, 温度变量 T 的单位是 K, 波长 λ 的单位是 nm。

两束泵浦光在晶体中满足最佳失配 ($\Delta k_m = 0$) 条件, 即 $\lambda_m = 0.5556 \mu\text{m}$ 和 $\lambda_{m+1} = 0.5561 \mu\text{m}$ 时, 由式(8), GaP, GaAs 和 PPLN 晶体对应的 λ 分别为 $493.81 \mu\text{m}$, $89.06 \mu\text{m}$ 和 $238 \mu\text{m}$ 。为减小晶体对泵浦光能量的吸收, 将 $\Delta k_m = 0$ 时的 λ 值代入式(7)中, 可得波矢失配量随泵浦光频率变化关系, 3 种晶体在波长为 $0.566 \mu\text{m}$ 时完全失配。当高频泵浦光频率为 530~550 THz 时, GaP, GaAs 和 PPLN 晶体对应 Δk_m 取值范围分别为 20.29 cm^{-1} , 197.09 cm^{-1} 和 2.68 cm^{-1} 。图 2 可看出 GaP 和 GaAs 晶体 Δk_m 的变化较大, Δk_m 的快速增大或减小将导致泵浦光功率的迅速衰减。由于注入泵浦光功率的迅速减小, 输出的太赫兹功率将随之递减, 故在 530~550 THz 的波段内, GaP 和 GaAs 晶体无法完成高级级联差频过程。536~544 THz 的波段范围内 PPLN 晶体 Δk_m 的取值范围最小, 且满足级联效应的 QPM 条件。级联效应可使得太赫兹辐射的输出效应得到增强, 由于级联(重复)输出, 能够大大提高在 PPLN 晶体中太赫兹辐射的产生效率。

2.2 极化周期

为了得到更好的耦合效率, 讨论晶体周期与泵浦光频率的关系, 基于周期性极化晶体 QPM 产生的太赫兹波频率为 0.5 THz。由式(8)可得实现一阶 QPM 极化周期随泵浦光频率的变化关系。在图 3 中高频泵浦光波长从 $0.541 \mu\text{m}$ 变化至 $0.571 \mu\text{m}$ 时, 周期结构 GaP, GaAs 和 PPLN 晶体相应的极化周期分别从 $438.48 \mu\text{m}$ 变化至 $556.94 \mu\text{m}$, 从 $71.73 \mu\text{m}$ 变化至 $108.85 \mu\text{m}$ 以及从 $236.27 \mu\text{m}$ 变化至 $239.89 \mu\text{m}$, 取值范围分别为 $118.46 \mu\text{m}$, $37.12 \mu\text{m}$ 和 $3.62 \mu\text{m}$ 。可以看出, 二者呈线性关系, 易于调谐。GaAs 晶体的 λ 最小, 而 PPLN 晶体 λ 的取值范围最小。

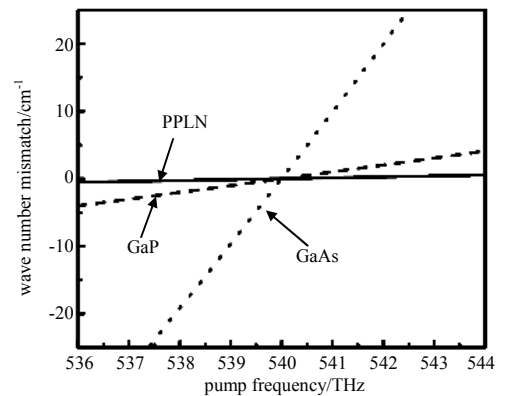


Fig.2 Relationship between the wave vector mismatch and pump frequency
图 2 波矢失配量随泵浦光频率变化关系

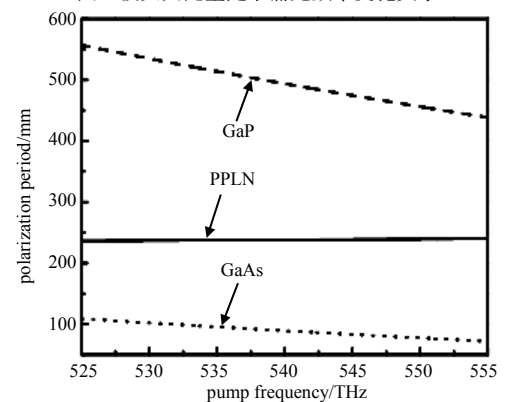


Fig.3 Relationship between polarization period and pump frequency
图 3 极化周期随泵浦光频率变化关系

在已有实验报道中, 室温($T=300\text{ K}$)工作条件下, 产生 1 THz 时 GaP 晶体对泵浦光和太赫兹波的吸收系数分别是 0 cm^{-1} 和 4 cm^{-1} [29], GaAs 晶体对泵浦光和太赫兹波的吸收系数分别是 0 cm^{-1} 和 1 cm^{-1} [30], PPLN 晶体对泵浦光和太赫兹波的吸收系数分别是 0 cm^{-1} 和 16 cm^{-1} [31]。由式(11)知, Δk_m 反比于 η , 即波矢失配量越小, 转换效率越高, 由式(7)知, A 正比于 Δk_m , 即波矢失配量越小, 极化周期越小, 故极化周期的取值范围不宜过大[24]。对比 3 种周期结构晶体, GaAs 晶体的 A 最小, 且同等工作条件下晶体的吸收损耗最小, 而 PPLN 晶体 A 的取值范围最小, 可以获得更加稳定的太赫兹输出信号。

2.3 DFG 太赫兹功率的计算

理想情况下, 在 DFG 太赫兹功率的计算中设定 λ_m 和 λ_{m+1} 为 $0.5556\text{ }\mu\text{m}$ 和 $0.5561\text{ }\mu\text{m}$, 注入的任意泵浦光功率大小为 50 MW , 光束横截面积为 1 mm^2 。GaP 和 GaAs 晶体的有效非线性系数分别为 $d=71\text{ pm/V}$ [32] 和 $d=94\text{ pm/V}$ [33], PPLN 晶体的二阶非线性极化率为 $\chi_0^{(2)}=336\text{ pm/V}$ [34], 根据式(12)~式(15), 计算了 2 束泵浦光和 THz 波在 GaP 晶体的折射率分别为 3.427, 3.426 和 3.339, 在 GaAs 晶体中的 n_m, n_{m+1} 和 n_T 分别为 4.515, 4.509 和 3.582, 在 PPLN 晶体中的 n_m, n_{m+1} 和 n_T 分别为 2.214 8, 2.214 6 和 4.934。

采取数据模拟与理论分析相结合的方法, 代入晶体各自的折射率, 由式(9)可得 DFG 的太赫兹功率随晶体作用长度的变化关系。在图 4 中, 当晶体长度取 0.1 mm , 1 mm 和 1.8 mm 时, 在 GaP 晶体中 DFG 的 P_T 为 265.65 W , 0.027 MW 和 0.086 MW , GaAs 晶体输出的 P_T 为 250.30 W , 0.025 MW 和 0.081 MW , PPLN 晶体输出的 P_T 为 977.75 W , 0.098 MW 和 0.317 MW 。在曲线变化上, GaP 和 GaAs 晶体的曲线基本重合, 而 PPLN 晶体的曲线增长最快, 比 GaP 和 GaAs 晶体的曲线高。从 P_T 的大小来看, 在 GaP 晶体中 DFG 的 P_T 略大于在 GaAs 晶体中输出的功率, PPLN 晶体输出的 P_T 最大。可以看出在 540 THz 和 539.5 THz , 理想情况下 PPLN 晶体中 DFG 的 P_T 最大, 且太赫兹功率随着晶体长度的增加呈指数形式变化, 根据式(11)可知, PPLN 晶体的转换效率同样最大。之后讨论 MgO:PPLN 晶体在 $532\sim 540\text{ THz}$ 波段范围内级联差频产生太赫兹辐射的情况。

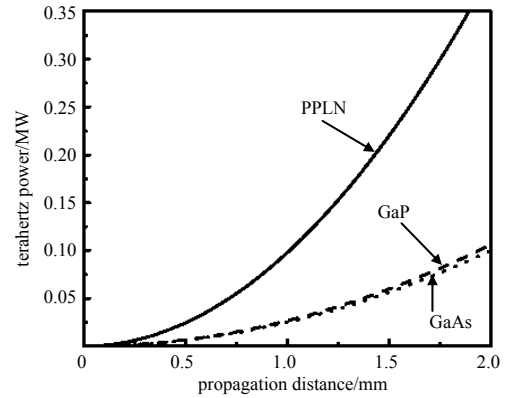


Fig.4 Relationship between the terahertz power and crystal length
图 4 太赫兹功率随晶体长度变化关系

3 MgO:PPLN 晶体影响因素的讨论

3.1 级联差频产生太赫兹功率的近似计算

选择 MgO:PPLN 晶体, 由于级联过程斯托克斯光($m>0$)的相互作用远远强于反斯托克斯光($m<0$)的作用[13], 只讨论斯托克斯光, 推导式中仅有正数阶。由于光波经过晶体有损耗, 在损耗不能忽略的情况下, 基于级联差频 QPM 的太赫兹功率表达式简化为:

$$P_T(l_{\text{cas}}) = \frac{1}{2} \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \right)^2 \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(2\omega_T d)^2}{n_m n_{m+1} n_T c^2} \frac{P_m P_{m+1}}{A} e^{-\alpha_T l_{\text{cas}}} \frac{1 + e^{-\Delta\alpha l_{\text{cas}}} - 2e^{-\frac{1}{2}\Delta\alpha l_{\text{cas}}} \cos(\Delta k_m l_{\text{cas}})}{(\Delta k_m l_{\text{cas}})^2 + \left(\frac{1}{2} \Delta\alpha l_{\text{cas}} \right)^2} l_{\text{cas}} \quad (16)$$

式中 $\Delta\alpha = \alpha_m + \alpha_{m+1} - \alpha_T$ 。由于晶体长度以及相位失配的影响, 晶体有吸收因子。 $T=300\text{ K}$ 时 PPLN 晶体的吸收因子很大, 导致 P_T 的快速衰减, 考虑到 MgO:PPLN 晶体的温度调谐性, 可以采用降温法降低损耗。

为了得到稳定的太赫兹输出信号, 研究低温($T=10\text{ K}$)工作条件下[31], 产生 0.5 THz 波的情况。由于 P_T 有阈值, 在 P_T 计算中取有限阶数[14], 可以将十五阶 DFG 过程近似为级联差频的整个过程, 级联差频过程产生的 P_T 可等效为 15 次 DFG 过程产生功率的总和。衰减因子越大, 其泵浦光功率(强度)随之减小, 对 P_T 的贡献作用越差, 15 次过程以后 P_T 的值极速衰减, 其后太赫兹功率转化为泵浦光功率, 忽略不计。由式(16)可得太赫兹功率随晶体作用长度的变化关系, 设定高频泵浦光波长从 $0.556\text{ }\mu\text{m}$ 变化至 $0.564\text{ }\mu\text{m}$, 注入的任意光束功率大小为 50 MW , A 为 1 mm^2 。图 5 是相同相位失配条件下光谱的演化, 解释了太赫兹辐射源的物理特性。二阶 P_T 对应的峰值是 0.780 MW , 三阶 P_T 的峰值是 1.16 MW , 五阶 P_T 的峰值是 1.86 MW , 十五阶 P_T 的峰值是 3.72 MW , 阶数越大, P_T 的峰值越大, 15 次级联差频产生功率的大小是 DFG 功率大小的 9.5 倍。比较分析级联差频过程(cascaded DFG,

10 阶级联波长)与差频过程(DFG, 1 阶波长), 级联差频过程产生的太赫兹功率为 3.14 MW, 而与之对应 DFG 的太赫兹功率为 0.391 MW, 级联差频产生的 P_T 增大了 8 倍, 显然级联差频产生的太赫兹辐射相比于无级联 DFG 得到了增强。

3.2 晶体吸收因子的影响

在级联差频过程中, 晶体吸收和相位失配均对太赫兹产生影响, 二者共同决定级联 DFG 太赫兹辐射功率的衰减因子。光波在晶体中有吸收损耗, 根据文献[14], 相较于吸收损耗, 相位失配对级联差频过程的影响要小得多, 一般忽略不计。若不考虑相位失配, 就可以很好地逼近所得数值的积分, 故晶体吸收为主要影响因素。研究 MgO:PPLN 晶体的吸收特性, 该晶体的吸收因子受温度变化影响, 降低温度可以降低晶体在太赫兹波段的吸收, 保持产生太赫兹的频率为 0.5 THz, 温度从 10 K 变化到 300 K, 相应吸收因子变化为 0.25 cm^{-1} (10 K), 1.3 cm^{-1} (100 K) 和 7.5 cm^{-1} (300 K)^[31]。这里假设红外吸收系数均相同, 最佳脉冲形式均相同, 所有光束的耦合系数均相同。

对于十五阶级联波长, 对比分析不同工作温度下在 MgO:PPLN 晶体中考虑吸收因子和不考虑吸收因子的变化关系, 在图 6 中不考虑吸收时各自频率(波长)的 P_T 分别为 24.08 MW(10 K), 1.59 MW(100 K) 和 47.57 kW(300 K), 考虑吸收时的 P_T 分别为 3.72 MW(10 K), 198.21 kW(100 K) 和 6.08 kW(300 K)。10 K, 100 K 和 300 K 三种温度下的最大功率值均有不同程度的衰减, 大小分别为理想情况下的 P_T 值的 15.5%, 12.5% 和 13%, 级联差频过程中约 90% 的太赫兹辐射被吸收。在 MgO:PPLN 晶体中, 吸收损耗是影响获得高能量太赫兹辐射源的重大因素之一。

3.3 级联过程转换效率的计算

对于 MgO:PPLN 晶体, 取高频泵浦光频率的范围为 532~540 THz。为了得到精确的泵浦光频率与晶体长度值, 分析十五阶级联差频过程。通过观察不同频率的光波频谱, 知道最佳泵浦光频率取决于注入泵浦光的频率, 在此范围内对耦合波方程进行积分。根据式(11), η 正比于 l_{cas} , 即 l_{cas} 越大, η 越大, P_T 也越大, 此时吸收损耗随之变大, 反作用于 P_T , 导致 P_T 减小, η 随之减小, P_T 和 η 的增长受到限制。级联差频过程中有最大转换效率(η_{max}), 转换效率在 $\Delta k_m = 0$ 处取得最大值, 定义它为太赫兹能量与泵浦光能量 SFG 的比值^[20]:

$$\eta_{\text{max}} = h_{\omega_T} / \sum_m h_{\omega_m} \quad (17)$$

在非线性三波耦合波(A_m, A_{m+1}, A_T)的相互作用中, 相比于脉冲持续时间, 自相位调制的影响可以忽略不计。一般情况下, 在离散模式下 η 是总的光谱强度之比^[18]:

$$\eta = \frac{n_T |A_T|^2}{\sum_m n_m |A_m|^2} \quad (18)$$

根据式(18)计算分析转换效率。初始阶段 η 的增长并不显著, 太赫兹辐射产生的效率几乎没有增加, 之后突然迅猛增长。在一定范围内, η 随泵浦光频率的增加而呈指数形式增大, η 随着 l_{cas} 的变化曲线可以类比成双曲正弦(指数)曲线, 随着 l_{cas} 的显著增加, η 将很快超过 1%。 l_{cas} 继续增长, 当变化至某一特定值时, η 的增长开始变缓, 逐渐趋于 η_{max} 。当 $\eta_{\text{max}} > 1\%$ 时, 相当于 1 J 的泵浦光子能量将产生 10~100 mJ 的太赫兹光子能量, 此时最大光子转换效率超过理论值 100%, 突破了 Manley-Rowe 的条件限制。

级联差频过程发生了频移, 由于频谱频移和频谱扩展引起相位匹配条件的变化, 此时产生转换效率下降和振荡的现象, 故 η 有最大值而不会一直增长。 η 的下降和振荡现象可以通过在后续阶段重新使用光谱产生 THz, 或者通过改变 l_{cas} 而改变周期的方法来补救, 此时会出现第 2 个甚至第 m 个略低于 η_{max} 的峰值, η 的衰减得到抑制。

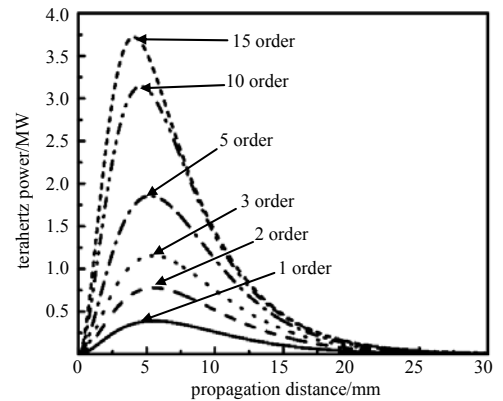


Fig.5 Terahertz power based on cascaded DFG with cascading orders 2,3,5,10,15 and 1
图 5 基于 2,3,5,10,15 和 1 阶的太赫兹功率

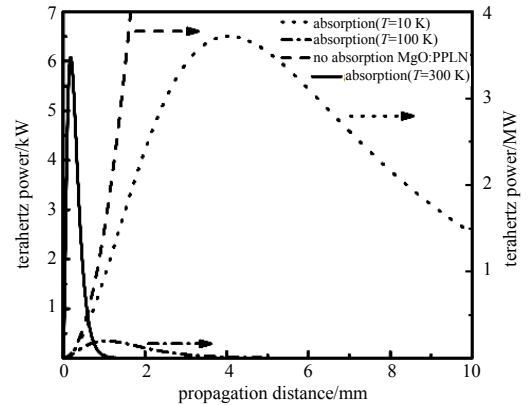


Fig. 6 Effect on absorption of cascaded DFG
图 6 吸收对级联差频的影响

若 η 没有达到饱和值, η 会在 l_{cas} 较长的部分继续增长, 直到达到完全相位失配, 即 $\Delta k_m = 0$, η 呈现完全振荡行为直至衰减为零。通过计算可以得知 $\eta_{\text{max}} = 3.72\%$, 级联差频大大提高了差频过程的转换效率。

4 结论

本文研究了基于周期性极化 GaP 晶体、GaAs 晶体和 PPLN 晶体在泵浦光频率(波长)为 540 THz(0.556 μm)时 QPM 级联差频的基本理论以及太赫兹波的调谐特性。通过求解三波耦合方程, 在相位匹配条件下, 计算 3 种晶体的波矢失配量、极化周期和太赫兹功率, 并对结果进行比较, 理论分析了级联差频过程中的增益、量子效率和吸收因子对太赫兹输出特性的影响。构建基于 MgO:PPLN 晶体 QPM 原理的宽调谐激光源系统, 计算了级联 DFG 的转换效率。根据计算结果, 0.545~0.566 μm 波长范围内 GaP, GaAs 和 PPLN 晶体 Δk_m 的取值范围分别为 20.28 cm^{-1} , 197.09 cm^{-1} 和 2.68 cm^{-1} ; 而 0.541~0.571 μm 波段内 λ 的取值范围分别为 438.48~556.94 μm , 71.73~108.85 μm 和 236.27~239.89 μm ; 理想情况下 l_{cas} 取 1 mm 时, GaP, GaAs 和 PPLN 晶体 P_T 分别为 0.027 MW, 0.025 MW 和 0.098 MW。525~555 THz 波段内, 在 GaP 晶体中 DFG 的太赫兹功率略大于 GaAs 晶体输出的功率, GaAs 晶体的极化周期和吸收损耗最小, PPLN 晶体波矢失配量和极化周期的取值范围最小, 而输出的太赫兹功率最大, 同时满足级联效应的条件。对于 MgO:PPLN 晶体, λ_m 从 0.556 μm 变化至 0.564 μm , 注入的任意光束功率大小为 50 MW, 得到级联差频产生的 P_T 为 3.72 MW。相比于 DFG, 十五级级联差频产生的太赫兹功率增大了 9.5 倍, 表现出不同于 DFG 的物理特性。 $\eta_{\text{max}} = 3.72\% > 1\%$, 即 1 J 的泵浦光子能量产生 10~100 mJ 的太赫兹光子能量, 光子转换效率超过理论值 100%, 解决了光子转换效率 Manley-Rowe 关系的缺陷。计算结果对研究周期性极化 GaP 晶体、GaAs 晶体和 PPLN 晶体具有重要参考价值, 级联差频的方法为利用激光技术获得高能量的太赫兹辐射源铺平了道路。级联差频产生太赫兹的输出还可以通过增加阶数以及改善晶体的周期变化来得到更进一步的改进。

参考文献:

- [1] 姚建铨. 太赫兹技术及其应用[J]. 重庆邮电大学学报(自然科学版), 2010,22(6):703-707. (YAO Jianquan. Introduction of THz-wave and its applications[J]. Journal of Chongqing University Posts and Telecommunications(Natural Science Edition), 2010,22(6):703-707.)
- [2] 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. (LIU Shenggang. Recent development of Terahertz science and technology[J]. China Basic Science, 2006,8(1):7-12.)
- [3] 王波,张岩. 太赫兹超材料和超表面器件的研发与应用[J]. 太赫兹科学与电子信息学报, 2015,13(1):1-12. (WANG Bo, ZHANG Yan. Design and applications of THz metamaterials and metasurfaces[J]. Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology, 2015,13(1):1-12.)
- [4] 詹洪磊,王玉霞,王雪松,等. 煤炭标准物质的太赫兹光谱聚类分析[J]. 太赫兹科学与电子信息学报, 2016,14(1):26-30. (ZHAN Honglei, WANG Yuxia, WANG Xuesong, et al. Cluster analysis concerning the terahertz spectroscopy of coal materials[J]. Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology, 2016,14(1):26-30.)
- [5] 熊兆贤,黄金保,薛昊,等. 太赫兹时域光谱系统检测 MCT 陶瓷太赫兹性能[J]. 太赫兹科学与电子信息学报, 2014,12(5):663-666. (XIONG Zhaoxian, HUANG Jinbao, XUE Hao, et al. Terahertz time-domain spectroscopy for MCT ceramics[J]. Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology, 2014,12(5):663-666.)
- [6] 王玉文,董志伟,李瀚宇,等. 太赫兹脉冲大气传输衰减特性[J]. 太赫兹科学与电子信息学报, 2015,13(2):208-214. (WANG Yuwen, DONG Zhiwei, LI Hanyu, et al. Atmospheric attenuation characteristics of terahertz pulse propagation[J]. Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology, 2015,13(2):208-214.)
- [7] 梁美彦,邓朝,张存林. 太赫兹雷达成像技术[J]. 太赫兹科学与电子信息学报, 2013,11(2):189-198. (LIANG Meiyuan, DENG Chao, ZHANG Cunlin. THz radar imaging technology[J]. Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology, 2013,11(2):189-198.)
- [8] 张健,邓贤进,王成,等. 太赫兹高速无线通信:体制、技术与验证系统[J]. 太赫兹科学与电子信息学报, 2014,12(1):1-13. (ZHANG Jian, DENG Xianjin, WANG Cheng, et al. Terahertz high speed wireless communications: systems, techniques and demonstrations[J]. Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology, 2014,12(1):1-13.)
- [9] 闵碧波,曾嫦娥,印欣,等. 太赫兹技术在军事和航天领域的应用[J]. 太赫兹科学与电子信息学报, 2014,12(3):351-354. (MIN Bibo, ZENG Chang'e, YIN Xin, et al. Application of terahertz techniques in military and space[J]. Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology, 2014,12(3):351-354.)

- [10] LU Q,RAZEGHJ M. Recent advances in room temperature,high-power terahertz quantum cascade laser sources based on difference-frequency generation[J]. Applied Physics Letters, 2016,101(25):97–105.
- [11] RAO Z,WANG X,LU Y. Tunable terahertz generation from one CO₂ laser in a GaSe crystal[J]. Optics Communications, 2011,284(23):5472–5474.
- [12] MURRAY R T,RUNCORN T H,KELLEHER E J,et al. Highly efficient mid-infrared difference-frequency generation using synchronously pulsed fiber lasers[J]. Optics Letters, 2016,41(11):2446–2449.
- [13] 赵刚,彭续金,杨闯,等. CO₂激光差频产生太赫兹波的理论计算及分析[J]. 太赫兹科学与电子信息学报, 2016,14(2):163–166. (ZHAO Gang,PENG Xujin,YANG Chuang,et al. Computation and analysis of terahertz wave difference frequency based on CO₂ laser[J]. Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology, 2016,14(2):163–166.)
- [14] 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):034210-1–034210-8. (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):034210-1–034210-8.)
- [15] 姚建铨. 非线性光学频率变换及准相位匹配技术[J]. 人工晶体学报, 2002,31(3):201–207. (YAO Jianquan. Development of nonlinear optical frequency conversion and quasi phase matching technology[J]. Journal of Synthetic Crystals, 2002, 31(3):201–207.)
- [16] ARMSTRONG J A,BLOEMBERGEN N,DUCING J,et al. Interactions between light waves in a nonlinear dielectric[J]. Physical Review, 1962,127(6):1918–1939.
- [17] SCHAAR J E,VODOPYANOV K L,KUO P S,et al. Terahertz sources based on intracavity parametric down-conversion in quasi-phase-matched gallium arsenide[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2008,14(2):354–362.
- [18] RAVI K,HEMMER M,CIRMI G,et al. Cascaded parametric amplification for highly efficient terahertz generation[J]. Optics Letters, 2016,41(16):3806.
- [19] LI Z,ZHONG K,BING P,et al. Investigation on Terahertz generation by GaP ridge waveguide based on cascaded difference frequency generation[J]. Journal of the Optical Society of Korea, 2016,20(1):169–173.
- [20] CRONIN-GOLOMB M. Cascaded nonlinear difference-frequency generation of enhanced terahertz wave production[J]. Optics Letters, 2004,29(17):2046–2048.
- [21] 季家镛,冯莹. 高等光学教程[M]. 北京:科学出版社, 2008. (JI J R,FENG Y. Advanced optics textbook[M]. Beijing: Science Press, 2008.)
- [22] 钱士雄,王恭明. 非线性光学[M]. 上海:复旦大学出版社, 2001. (QIAN S X,WANG G M. Nonlinear optics[M]. Shanghai: Fudan University Press, 2001.)
- [23] AGGARWAL R L,LAX B. Optical mixing of CO₂ lasers in the far-infrared[J]. Topics in Applied Physics, 1977(16):19–80.
- [24] 李雪,延凤平,谭思宇. 基于PPLN晶体的可调谐太赫兹波辐射特性研究[J]. 光电子·激光, 2013,24(12):2265–2269. (LI Xue,YAN Fengping,TAN Siyu. Study on the characteristics of tunable THz-wave radiation based on the PPLN crystal[J]. Journal of Optoelectronics Laser, 2013,24(12):2265–2269.)
- [25] 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. (LIU Huan,XU Degang,YAO Jianquan. Theoretical study of tunable terahertz radiation based on difference-frequency generation in GaSe and ZnGeP₂ crystals[J]. Acta Physica Sinica, 2008,57(9):5662–5669.)
- [26] BASS M. Handbook of optics[M]. New York,US:McGraw-Hill, 1995.
- [27] SKAULI T,KUO P S,VODOPYANOV K L,et al. Improved dispersion relations for GaAs and applications to nonlinear optics[J]. Journal of Applied Physics, 2003,94(10):6447–6455.
- [28] JUNDT D H. Temperature-dependent Sellmeier equation for the index of refraction,n(e),in congruent lithium niobate[J]. Optics Letters, 1997,22(20):1553–1555.
- [29] PALIK E D. Handbook of optical constants of solids:Gallium Phosphide(GaP)[M]. New York,US:Academic Press, 1998.
- [30] PALIK E D. Handbook of optical constants of solids:Gallium Arsenide(GaAs)[M]. New York,US:Academic Press, 1998.
- [31] FÜLÖP J A,PÁLFALVI L,HOFFMANN M C,et al. Towards generation of mJ-level ultrashort THz pulses by optical rectification[J]. Optics Express, 2011,19(16):15090–7.
- [32] KITAMOTO A,SHOJI I,SHORANE M,et al. Absolute scale of second-order nonlinear-optical coefficients[J]. Journal of the Optical Society of America B, 1997,14(9):2268–2294.
- [33] SKAULI T,VODOPYANOV K L,PINGUET T J,et al. Measurement of the nonlinear coefficient of orientation-patterned GaAs and demonstration of highly efficient second-harmonic generation[J]. Optics Letters, 2002,27(8):628–630.