

基于闪锌矿晶体中受激电磁耦子散射 产生可调谐太赫兹波的理论研究*

李忠洋[†] 姚建铨 李 俊 邢丕彬 徐德刚 王 鹏

(天津大学激光与光电子研究所, 天津大学精仪学院, 光电信息技术科学教育部重点实验室, 天津 300072)

(2009 年 11 月 7 日收到; 2010 年 1 月 16 日收到修改稿)

基于受激电磁耦子散射原理, 采用已报道的利用非线性光学参量振荡方法产生可调谐太赫兹波的理论分析模型, 以 GaAs, GaP, InP, ZnTe 晶体为代表, 计算分析了在闪锌矿晶体中参量振荡产生太赫兹波的吸收、增益特性, 对输出 THz 波的调谐特性给出了详尽分析. 分析太赫兹波高效耦合输出的腔型结构, 并与掺氧化镁铌酸锂晶体组成的太赫兹波参量振荡器做对比.

关键词: 太赫兹波, 太赫兹波参量振荡, 电磁耦子, 闪锌矿晶体

PACC: 4265K, 4265C, 9580G

1. 引 言

太赫兹波 (THz 波) 是指频率在 0.1—10 THz, 对应于波长为 3000—30 μm 范围内的电磁波, 其波段位于电磁波谱中毫米波和远红外光之间, 过去也称亚毫米波. THz 波在国防安全、空间通信、大气探索、医学成像、材料科学、生命科学、食品检测等领域具有广泛的应用价值, 近年来在国际上引起了广泛关注, 成为各发达国家的重要研究方向^[1-5]. 目前限制 THz 波技术快速发展的主要技术瓶颈之一就是缺乏高功率、相干、可调谐、室温运转的 THz 波辐射源, 而基于受激电磁耦子散射的太赫兹波参量振荡器 (TPO) 是产生 THz 波辐射的有效手段之一. 与其他方法相比, 不仅可以产生高能量、相干窄带、可连续调谐的 THz 波辐射, 还具有非线性转换效率高、调谐方式简单等特点^[5-10]. 近年来 Kawase 和 Ito 科研小组在掺氧化镁铌酸锂 (MgO: LiNbO_3) 晶体中利用 TPO 的方法实现了高功率、相干、可调谐的 THz 波输出, 峰值功率达到几十毫瓦^[4-6]; 2008 年 Edwards 科研小组在 MgO: LiNbO_3 晶体中利用内腔 TPO 产生了峰值功率约 3 W 的 THz 波输出^[11,12]. MgO: LiNbO_3 晶体具有较大的非线性系数, 容易生

长, 价格便宜等优点, 但是它对 THz 波有强烈的吸收, 在 3 THz 时吸收系数达到了 100 cm^{-1} , 严重限制了 THz 波的输出. 闪锌矿晶体 (GaAs, GaP, InP, ZnTe, CdTe, AlSb 等) 具有较大的非线性系数 (如 GaAs 晶体 $d_{36} = 170 \text{ pm/V}^{[13]}$), 且在 THz 波段有相对较低的吸收, 利用其作为参量振荡晶体必定可以得到更高的 THz 波输出.

闪锌矿晶体属于立方晶体结构, 其空间群是 T_d^2 ($F\bar{4}3m$), 每个原胞中包含两个原子, 有 6 个自由度. 在 Γ 点晶格振动的对称性分类为 $2F_2$, 其中一个 F_2 是三重简并的声学模, 另一个 F_2 是拉曼活性的极性光学模, 根据群论的对称性分类, 这个光学模也是三重简并的, 被分裂成一个非简并的纵模 (LO 模) 和一个双重简并的横模 (TO 模), 此 TO 模既是拉曼活性的又是红外活性的, 它可以与红外激光在满足一定条件下耦合产生电磁耦子, 在电磁耦子色散曲线上小波矢处的电磁耦子散射就是我们想要得到的 THz 波辐射, 这个散射过程包括二阶和三阶非线性过程, 同时兼有参量和拉曼散射效应.

目前科技工作者大多将 MgO: LiNbO_3 晶体当做 TPO 的增益介质, 对其他晶体用做 TPO 增益介质的报道较少. 本文基于受激电磁耦子散射原理, 以 GaAs, GaP, InP, ZnTe 晶体为代表, 计算分析了在闪

* 国家重点基础研究发展计划 (973) 项目 (批准号: 2007CB310403) 资助的课题.

[†] E-mail: lzy8376@yahoo.com.cn

锌矿晶体中参量振荡产生太赫兹波的吸收、增益特性,对输出 THz 波的调谐特性给出了详尽分析. 分析太赫兹波高效耦合输出的腔型结构,并与掺氧化镁铌酸锂晶体组成的太赫兹波参量振荡器做对比. 计算结果为在闪锌矿晶体中参量振荡产生 THz 波

2. TPO 理论分析

2.1. 电磁耦子色散特性

电磁耦子是由晶体中横向极性晶格振动模和电磁振动模耦合产生的,在电磁耦子色散曲线上小波矢处的电磁耦子散射就是我们想要得到的 THz 波辐射. THz 波的波矢 k 的大小通常在 400 cm^{-1} 以下,通常拉曼散射所采用的抽运光是近红外光,所以抽运光的波矢 k_p 和产生的 Stokes 光波矢 k_s 的大小通常在 10^5 cm^{-1} 量级,因此只有采用前向拉曼散射技术才可能获得太赫兹波辐射,如图 1 所示,入射

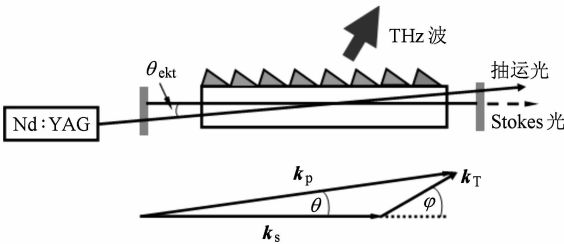


图 1 TPO 实验原理图和电磁耦子散射过程相位匹配图

光 ω_p , Stokes 光 ω_s , THz 波 ω_T 满足能量守恒条件

$$\omega_p = \omega_s + \omega_T, \quad (1)$$

和动量守恒条件

$$k_p = k_s + k_T, \quad (2)$$

其中 $k_i = \frac{\omega_i}{c} n_i$, $i = p, s, T$ 分别代表抽运光、Stokes 光、THz 波. 三波非共线相位匹配条件可以写作

$$k_T^2 = k_p^2 + k_s^2 - 2k_p k_s \cos\theta, \quad (3)$$

其中 θ 为抽运光 k_p 与 Stokes 光 k_s 的夹角, φ 为 k_s 与 THz 波 k_T 的夹角. 图 1 所示实验原理图就是现在各研究小组采用的实验装置示意图,抽运源是脉冲 Nd: YAG 激光器,重复频率 10 Hz,波长 1064 nm,脉宽 10 ns,增益介质是 MgO: LiNbO₃ 晶体,谐振腔由高性能的镜片组成,其对 1064 nm 激光是高透的,对 Stokes 光(1068—1080 nm)是高反的,THz 波由晶体的侧面输出,由于 THz 波会在晶体与空气

的交界面上发生全内反射,所以用硅棱镜耦合输出 THz 波,整个 TPO 谐振腔放在一个可以转动的平台上. 由方程(3)可知,通过旋转平台,就可以改变 θ 角,从而改变 k_r ,得到波长可调谐的 THz 波输出.

现在我们以 GaAs, GaP, InP, ZnTe 晶体为代表,研究由闪锌矿晶体组成 TPO 的各种特性. 这些晶体在近红外波段色散方程为

$$n(\lambda) = \left(A + \frac{B\lambda^2}{\lambda^2 - C} + \frac{D\lambda^2}{\lambda^2 - E} \right)^{1/2}, \quad (4)$$

波长 λ 的单位为 μm , (4) 式中各参数值见表 1 所示. 图 2 是 GaAs, GaP, InP, ZnTe 晶体在近红外波段的色散特性,可以看出在近红外波段色散曲线较为平滑.

表 1 GaAs, GaP, InP, ZnTe 晶体色散方程系数

	A	B	C	D	E
GaAs	6.29779	4.57613	0.24007	2.12568	1307.092
GaP	2.81479	6.276771	0.09116	2.055946	762.1311
InP	6.38671	3.12791	0.13649	1.90344	1082.35095
ZnTe	2.38988	4.16708	0.10944	1.21156	3203.98718

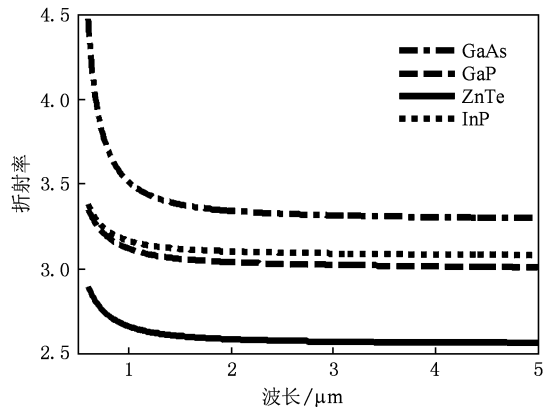


图 2 GaAs, GaP, InP, ZnTe 晶体在近红外波段的色散曲线

在 THz 波段, GaAs, GaP, InP, ZnTe 晶体色散特性可以采用经典振子模型获得^[14,15]. 定义传播常数 k 为一复数,其表达式为

$$k(\nu) = k_r(\nu) + ik_i(\nu) = 2\pi\nu\tilde{n}(\nu), \quad (5)$$

其中实部 k_r 与色散有关,虚部 k_i 与吸收有关, ν 为晶格振动频率,满足 $\nu = 1/\lambda$, 单位 cm^{-1} . 复折射率 $\tilde{n}(\nu)$ 与介电常数的关系为

$$\tilde{n}(\nu) = \sqrt{\varepsilon(\nu)}. \quad (6)$$

晶体的介电常数也为复数,即

$$\varepsilon(\nu) = \varepsilon_r(\nu) + i\varepsilon_i(\nu)$$

$$= \varepsilon_{\infty} + \sum_j \frac{S_j \nu_j^2}{\nu_j^2 - \nu^2 - i\nu\gamma_j}, \quad (7)$$

则有

$$\varepsilon_r(\nu) = \varepsilon_{\infty} + \sum_j \frac{S_j(\nu_j^2 - \nu^2)\nu_j^2}{(\nu_j^2 - \nu^2)^2 + \nu^2\gamma_j^2},$$

$$\varepsilon_i(\nu) = \sum_j \frac{S_j\nu_j^2\nu\gamma_j}{(\nu_j^2 - \nu^2)^2 + \nu^2\gamma_j^2},$$

其中, S_j, ν_j 和 γ_j 分别表示第 j 个晶格振动模的振动强度、振动频率和振动线宽, ε_{∞} 为高频介电常数. 定义静态介电常数 $\varepsilon_0 = \varepsilon_{dc} = \varepsilon_{\infty} + \sum_j S_j$.

根据方程(5)–(7), 可以计算得到

$$k_r(\nu) = 2\pi\nu \sqrt{\frac{1}{2}(\varepsilon_r + \sqrt{\varepsilon_r^2 + \varepsilon_i^2})}, \quad (8)$$

$$k_i(\nu) = 2\pi\nu \sqrt{\frac{1}{2}(-\varepsilon_r + \sqrt{\varepsilon_r^2 + \varepsilon_i^2})}. \quad (9)$$

根据(7)–(9)式理论计算了在抽运波长为 1064 nm 时, GaAs, GaP, InP, ZnTe 晶体的横向极性晶格振动模的色散曲线与在不同相位匹配角 θ 时的相位匹配曲线的相交情况, 如图 3 所示, 计算中使用

的参数见表 2.

表 2 GaAs, GaP, InP, ZnTe 晶体 TO 模的振动参数

	n_p	ε_{∞}	$d_{41}/(\text{pm/V})$	S	$\nu_{\text{TO}}/\text{cm}^{-1}$	γ/cm^{-1}
GaAs	3.479	10.9	170	1.9	269	6.5
GaP	3.1045	9.07	70.6	1.945	367	9.0
InP	3.153	9.61	143.5	2.85	304	8.0
ZnTe	2.6462	7.28	90	2.82	179	3.5

从图中可以看出, 晶格振动模的色散曲线是连续变化的, 因此当连续改变抽运光与 Stokes 光的夹角 θ 时, 晶格振动模色散曲线与相位匹配曲线的交点也是连续变化的, 因此利用 TPO 技术改变抽运光与 Stokes 光的夹角 θ 可以实现 THz 波的连续调谐输出. 以 GaAs 晶体为例, GaAs 晶体的 TO 模频率是 269 cm^{-1} , 当 θ 角从 0° 连续变化到 3.3° 时, 相位匹配曲线与 GaAs 晶体低频支 TO 模色散曲线的交点从 $\nu = 0 \text{ cm}^{-1}$ 连续变化到 $\nu = 269 \text{ cm}^{-1}$, 从而可以得到相应频率的 THz 波输出. 当 θ 角大于 3.3° 时, 相位匹配曲线与 TO 模色散曲线没有交点, 所以不能辐射出 THz 波.

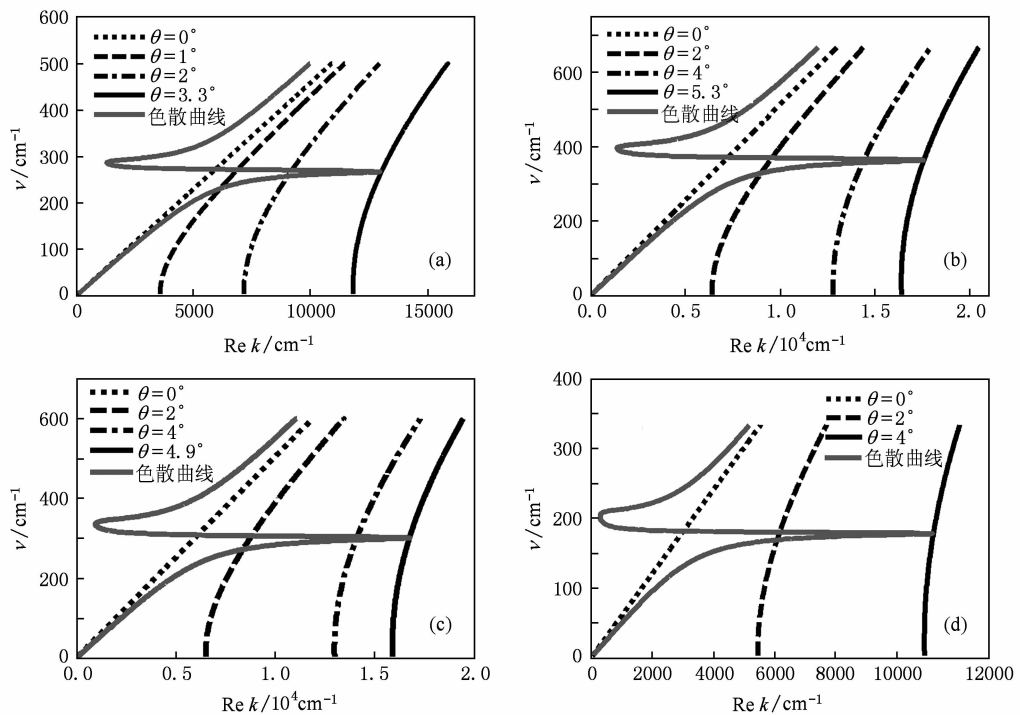


图 3 温度为 300 K, 抽运波长为 1064 nm 时, 晶体晶格振动模的色散曲线和不同 θ 角时的相位匹配曲线 (a) GaAs 晶体; (b) GaP 晶体; (c) InP 晶体; (d) ZnTe 晶体

由方程(3)可知, 当固定相位匹配角 θ 时, 改变抽运波长也可以得到连续可调谐 THz 波输出, 如图 4 所示, 当抽运波长从 10600 nm 连续变化到 650 nm

时, GaAs 晶体晶格振动模的色散曲线和相位匹配曲线的交点连续变化, 从而可以得到相应频率的 THz 波输出. 当抽运波长小于 650 nm 时, 两者没有交

点,所以不能辐射出 THz 波.

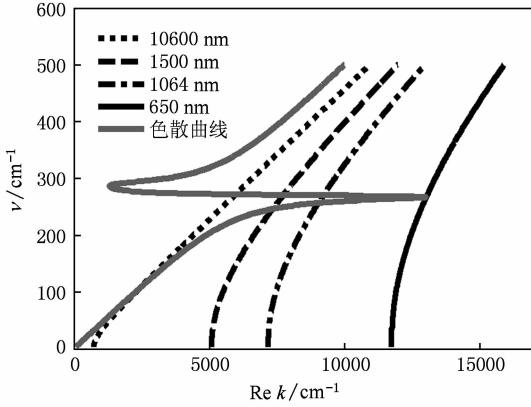


图 4 温度为 300 K, $\theta = 2^\circ$, GaAs 晶体晶格振动模的色散曲线和不同抽运波长时的相位匹配曲线

2.2. GaAs, GaP, InP, ZnTe 晶体在 THz 波段增益和吸收特性

根据文献[16], TPO 中 THz 波增益表达式在国际单位制中为

$$g_T = g_s \cos \varphi = \frac{\alpha_T}{2} \left\{ \left[1 + 16 \cos^2 \varphi \left(\frac{g_0}{\alpha_T} \right)^2 \right]^{1/2} - 1 \right\}, \quad (10)$$

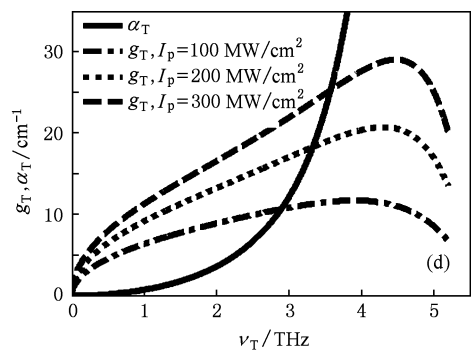
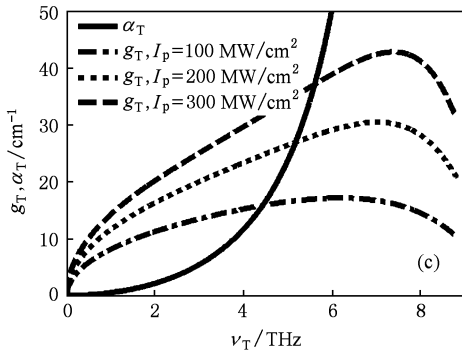
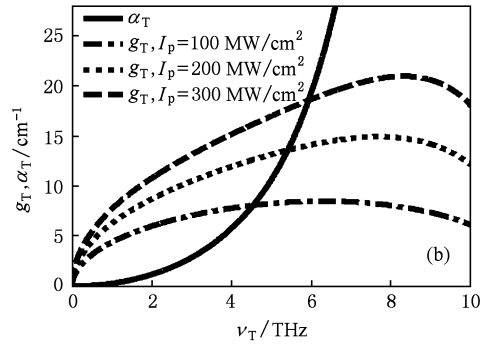
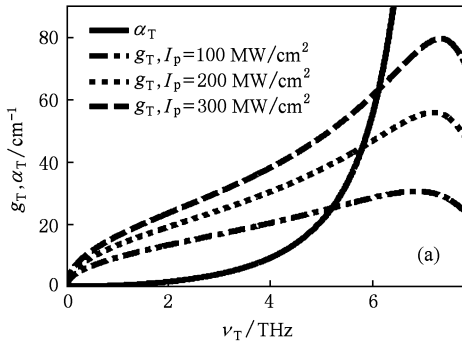


图 5 抽运波长为 1064 nm 时, THz 波的增益系数随着频率和抽运光功率密度的变化关系 (a) GaAs 晶体; (b) GaP 晶体; (c) InP 晶体; (d) ZnTe 晶体

$$g_0^2 = \frac{\nu_s \nu_T}{8 \epsilon_0 c n_s n_T n_p} I_p \left(d_E + \sum_j \frac{S_j \nu_j^2 d'_{Q_j}}{\nu_j^2 - \nu_T^2} \right)^2. \quad (11)$$

g_0 为低损耗极限情况下的参量增益, n_s, n_T 分别为 Stokes 光和 THz 波在频率为 ν_s, ν_T 时的折射率, $d_E = 4d_{33}$ 与二阶非线性参量过程有关, $d'_{Q_j} = \left[\frac{8\pi c^4 n_p (S_{ijk}^m / Ld\Omega)}{S_j \hbar \nu_j \nu_s^4 n_s (\bar{n}_T + 1)} \right]^{1/2}$ 与三阶拉曼散射过程有关, φ 为 THz 波与抽运光的夹角, α_T 为 THz 波在频率 ν_T 处的吸收系数, 由于 THz 波的复波矢 $k(\nu_T)$ 的虚部决定其吸收特性, 因此将 α_T 定义为

$$\begin{aligned} \alpha_T &= 2 |\operatorname{Im} k_T| = 2 \frac{\nu_T}{c} |\operatorname{Im} \sqrt{\epsilon(\nu_T)}| \\ &= 2 \frac{\nu_T}{c} \operatorname{Im} \left(\epsilon_\infty + \sum_j \frac{S_j \nu_j^2}{\nu_j^2 - \nu_T^2 - i \nu_T \gamma_j} \right)^{1/2}. \quad (12) \end{aligned}$$

根据 (10) — (12) 式理论计算了 GaAs, GaP, InP, ZnTe 晶体在 THz 波段增益和吸收特性, 如图 5 所示, 计算中使用的参数见表 2. 从图中可以发现, 增益 g_T 随着抽运功率密度 I_p 的增加而增大, 且最大值随着 I_p 的增加向高频方向移动. 在抽运功率一定的情况下, g_T 随着 ν_T 的增大缓慢增大, 到达最大值后迅速下降. 吸收系数 α_T 先缓慢增大到几个 cm^{-1} , 然后迅速增大到几十 cm^{-1} . 以 GaAs 晶体为例, 并与 MgO: LiNbO₃ 晶体做对比. 当 $I_p = 300$

MW/cm^2 , GaAs 晶体的增益系数从 0 缓慢增大到最大值 80 cm^{-1} , 此时对应 THz 波的频率为 7.36 THz , 然后迅速下降. 在 $0\text{--}4 \text{ THz}$ 范围内, α_r 最大值为 9.14 cm^{-1} . $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 晶体在 $I_p = 300 \text{ MW}/\text{cm}^2$ 时, 增益系数最大值为 6.2 cm^{-1} , 约为 GaAs 晶体的 $1/13$, 在 $0\text{--}4 \text{ THz}$ 范围内, α_r 最大值为 227 cm^{-1} , 是 GaAs 晶体的 25 倍, 所以相对于 $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 晶体, GaAs 晶体更适合作为 TPO 的增益介质. 同理可知 GaP, InP, ZnTe 晶体的性能也比 $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 晶体的更加优越.

2.3. TPO 实验设计

在 TPO 实验中, 现在大多采用图 1 所示的腔型结构, Stokes 光在腔内振荡, THz 波从晶体侧面经过硅棱镜耦合输出. 这种腔型结构虽然能够实现 THz 波的输出, 但是也有自身的不足. 首先 THz 波输出之前在晶体中要传输一段距离, 由于晶体对 THz 波的吸收较大, 所以严重限制了 THz 波输出功率; 其次用硅棱镜耦合输出 THz 波, 也要损耗一部分 THz 波, 而且 THz 波光束质量也要受到影响, 所以 TPO 谐振腔还需要进一步优化. 鉴于此我们提出了一种新的晶体组合结构, 如图 7 所示, 用两块晶体 A 和 B 组合成增益介质, THz 波在晶体的浅表面垂直出射, 减小了 THz 波在晶体中的传输距离, 且不需要硅棱镜耦合输出, 可以极大的增大 THz 的输出功率, 并且光束质量更好. 对于闪锌矿晶体, 抽运光以晶体的 $\langle 110 \rangle$ 方向入射才能与 TO 模相互作用, 下面以 InP 晶体为例, 说明此腔型结构的构造原理.

根据 (3) 式, 计算了 THz 波频率与 THz 波和 Stokes 光夹角 φ 之间的关系, 如图 6 所示, 在 $0\text{--}3 \text{ THz}$ 范围内, φ 角的改变很小, 四种晶体中 GaP 晶体的 φ 角改变最小为 1.16° , 最大的是 ZnTe 晶体为 4.94° , 我们以 InP 晶体为例说明此晶体组合结构. InP 晶体对应的 φ 角从 26.7° 变化到 28.4° . 在晶体 A 的切割中, 取 φ 角的中间值 27.55° (φ 角已在图中标明), 由于 Stokes 光在 InP 晶体与空气的分界面上的全反射角约为 18.5° , 小于 27.55° , 所以 Stokes 光在 InP 晶体的反射面上发生全反射. 由于 θ 小于 2° , 同理抽运光也在 InP 晶体的反射面上发生全反射. 在发生全反射点附近, 抽运光和 Stokes 光光束有较大部分重叠, 如图 7 所示, 所以在全反射点附近 THz 波有最大的增益, 又由于相位匹配关系, THz 波垂直于反射面出射, 不需要硅棱镜耦合输出, THz 波

光束质量会更好, 且 THz 波增益最大点距离出射面很近, 大大降低了晶体对 THz 波的吸收. 同理分析可知, 图 7 所示的腔型也适合于 GaAs, GaP, ZnTe 等其他闪锌矿晶体.

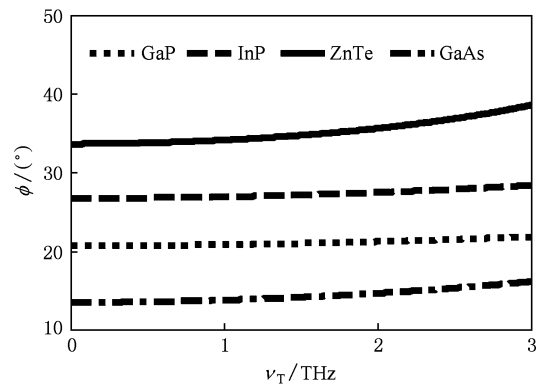


图 6 THz 波频率与 THz 波和 Stokes 光夹角 φ 之间的关系

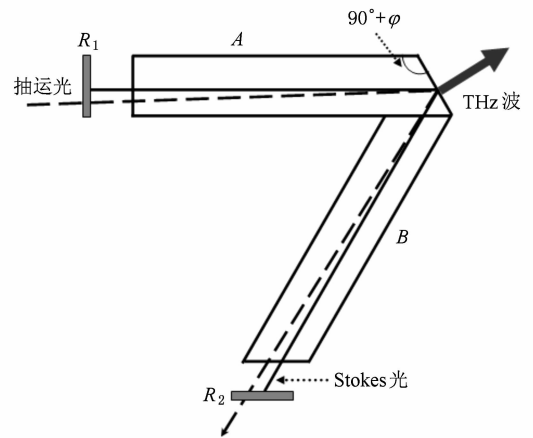


图 7 浅表垂直出射式 TPO 示意图

3. 结 论

本文基于受激电磁耦子散射原理, 采用已报道的利用非线性光学参量振荡方法产生可调谐太赫兹波的条件作为理论分析的实验模型, 以 GaAs, GaP, InP, ZnTe 晶体为代表, 计算分析了在闪锌矿晶体中参量振荡产生太赫兹波的吸收、增益特性, 以 GaAs 晶体为例, 当 $I_p = 300 \text{ MW}/\text{cm}^2$, GaAs 晶体的增益系数从 0 缓慢增大到最大值 80 cm^{-1} , 此时对应 THz 的频率为 7.36 THz , 然后迅速下降, 在 $0\text{--}4 \text{ THz}$ 范围内, α_r 最大值为 9.14 cm^{-1} . 对输出 THz 波的调谐特性给出了详尽分析, 当连续改变相位匹配角 θ 和抽运波长时可以实现 THz 波的连

续调谐输出. 分析太赫兹波高效耦合输出的腔型结构, 并与掺氧化镁铌酸锂晶体组成的太赫兹波参量振荡器做对比. 结果表明采用浅表垂直出射式 TPO, THz 波垂直于反射面出射, 不需要硅棱镜耦合

输出, THz 波光束质量会更好, 且 THz 波增益最大点距离出射面很近, 大大降低了晶体对 THz 波的吸收. 计算结果为在闪锌矿晶体中参量振荡产生 THz 波的实验研究提供深入和全面的理论基础.

- [1] Hayashi S, Minamide H, Ikari T, Ogawa Y, Shikata J, Ito H, Otani C, Kawase K 2007 *Appl. Opt.* **46** 117
- [2] Zhang K C, Liu S G 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 5258 (in Chinese) [张开春、刘盛纲 2007 物理学报 **56** 5258]
- [3] Liu H, Xu D G, Yao J Q 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 5662 (in Chinese) [刘欢、徐德刚、姚建铨 2008 物理学报 **57** 5662]
- [4] Kawase K, Shikata J, Imai K, Ito H 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 2819
- [5] Shikata J, Kawase K, Karino K, Taniuchi T, Ito H 2000 *IEEE Trans Microwave Theory Tech.* **48** 653
- [6] Kawase K, Sato M, Taniuchi T 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 2483
- [7] Shikata J, Sato M, Taniuchi T 1999 *Opt. Lett.* **24** 202
- [8] Imai K, Kawase K, Ito H 2001 *Opt. Express* **8** 699
- [9] Minamide H, Akiyama K, Ito H 2006 *Advanced solid state lasers TuC1*
- [10] Ikari T, Zhang X B, Minamide H 2006 *Opt. Express* **14** 1604
- [11] Edwards T, Walsh D, Spurr M 2006 *Opt. Express* **14** 1582
- [12] Stothard D J M, Edwards T J, Walsh D 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 141105
- [13] Shoji I, Kondo T, Ito R 2002 *Opt. Quant. Electron* **34** 797
- [14] Spitzer W G, Kleinmann D A 1961 *Phys. Rev.* **121** 1324
- [15] Barker A S, Jr, Loudon R 1967 *Phys. Rev.* **158** 433
- [16] Sussman S S 1970 *Microwave Laboratory Report No.* 1851 34

Theoretical study of tunable terahertz radiation based on stimulated polariton scattering in zinc blende crystal^{*}

Li Zhong-Yang[†] Yao Jian-Quan Li Jun Bing Pi-Bin Xu De-Gang Wang Peng

(The Institute of Laser & Optoelectronics, The College of Precision Instruments and Opto-Electronic Engineering, Tianjin

University, Key Laboratory of Opto-electronics Information and Technical Science (Ministry of Education), Tianjin 300072, China)

(Received 7 November 2009; revised manuscript received 16 January 2010)

Abstract

Based on the theory of stimulated polariton scattering, adopting reported experimental conditions that generate tuning terahertz wave utilizing nonlinear optical parametric oscillation as the theoretical analysis model, and taking GaAs, GaP, InP, ZnTe crystals as representatives, the absorption and gain characteristics in zinc blende crystal are calculated, and the output tuning characteristics of terahertz wave are also analyzed. We give detailed analysis of the cavity structure that efficiently outputs terahertz wave, and compare it with the terahertz parametric oscillator composed of MgO: LiNbO₃ crystal.

Keywords: terahertz wave, terahertz wave parametric oscillation, polariton, zinc blende crystal

PACC: 4265K, 4265C, 9580G

* Project supported by the National Basic Research Program of China (973 Program) (Grant No. 2007CB310403).

† E-mail: lzy8376@yahoo.com.cn