



基于有机吡啶盐晶体的太赫兹频率上转换探测

刘鹏翔 李伟 郭丽媛 祁峰 庞子博 李惟帆 汪业龙 刘朝阳

Terahertz wave up-conversion detection based on organic nonlinear optical crystals

Liu Peng-Xiang Li Wei Guo Li-Yuan Qi Feng Pang Zi-Bo Li Wei-Fan Wang Ye-Long Liu Zhao-Yang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 050701 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20201908

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201908>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

非线性光学超构表面

Nonlinear photonic metasurfaces

物理学报. 2017, 66(14): 147803 <https://doi.org/10.7498/aps.66.147803>

低维半导体材料在非线形光学领域的研究进展

Research progress of low-dimensional semiconductor materials in field of nonlinear optics

物理学报. 2020, 69(18): 184211 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200206>

基于等离激元纳米结构非线性响应的超快光开关及脉冲激光器

Ultrafast optical switches and pulse lasers based on strong nonlinear optical response of plasmon nanostructures

物理学报. 2020, 69(18): 189101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200456>

半导体上转换单光子探测技术研究进展

Research progress of semiconductor up-conversion single photon detection technology

物理学报. 2018, 67(22): 221401 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180618>

有机电光晶体4-(4-二甲氨基苯乙烯基)甲基吡啶对甲基苯磺酸盐的太赫兹光谱研究

Terahertz spectrum study of organic electro-optic crystal 4-N, N-dimethylamino-4'-N'-methyl-stilbazolium tosylate

物理学报. 2017, 66(24): 244211 <https://doi.org/10.7498/aps.66.244211>

基于载波抑制单边带调制的微波光子本振倍频上转换方法

Microwave photonic frequency up-converter with LO doubling based on carrier suppression single-sideband modulation

物理学报. 2019, 68(13): 134204 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190266>

基于有机吡啶盐晶体的太赫兹频率上转换探测*

刘鹏翔¹⁾³⁾ 李伟¹⁾³⁾⁴⁾ 郭丽媛¹⁾³⁾ 祁峰^{1)3)†} 庞子博²⁾
李惟帆¹⁾³⁾ 汪业龙¹⁾³⁾ 刘朝阳¹⁾³⁾

1) (中国科学院沈阳自动化研究所, 光电信息处理重点实验室, 沈阳 110169)

2) (中国电子科技集团公司第四十六研究所, 天津 300220)

3) (中国科学院机器人与智能制造创新研究院, 沈阳 110169)

4) (中国科学院大学, 北京 100049)

(2020年11月12日收到; 2020年12月7日收到修改稿)

利用激光泵浦国产有机吡啶盐 4-(4-二甲基氨基苯乙烯基) 甲基吡啶对甲苯磺酸盐 (4-N,N-dimethylamino-4'-N'-methyl-stilbazolium tosylate, DAST) 晶体, 通过非线性频率上转换方法实现了室温运转的高灵敏、快响应、宽频段太赫兹探测. 高效生成了近红外上转换光, 采集到其脉冲包络和光谱, 获得了 ns 量级的时间分辨率, 并换算太赫兹波的频率, 实现了对太赫兹信息的全面表征. 与商用高莱探测器相比, 上转换方法在 19 THz 频点的探测灵敏度高 4 个数量级; 在可探测频率 3.15—29.82 THz 范围内, 响应度普遍高 2—3 个数量级. 结果表明: 室温下的光泵频率上转换探测方法在时间分辨率和响应度方面远优于传统的热探测器, 极大地提高了差频有源太赫兹系统的动态范围, 使差频源在太赫兹波谱分析和成像等领域具有更大的应用潜力.

关键词: 太赫兹探测, 非线性光学, 有机非线性晶体, 频率上转换**PACS:** 07.57.Kp, 42.65.-k, 42.70.Jk, 42.79.Nv**DOI:** 10.7498/aps.70.20201908

1 引言

太赫兹波段因独特的电磁波谱位置, 具有广阔的应用前景, 受到各国政府和科研机构的广泛关注^[1]. 低成本、高性能的相干波源和探测器是太赫兹应用领域发展的基础. 当前的太赫兹探测方法主要有: 电子学方法 (如场效应管探测器^[2])、热方法 (测辐射热计 Bolometer、气动高莱探测器和热释电探测器等)、量子方法 (如量子点半导体探测器^[3]) 和光学方法. 光学探测方法包括: 用于时域光谱系统的光电导/光电采样^[4], 以及针对准单色波的非线性光学频率上转换方法^[5]. 频率上转换探测方法,

可以看作差频产生^[6]的逆过程, 通过太赫兹波与激光在非线性晶体中相互作用, 将信息加载到新生成的近红外光 (上转换光), 利用成熟的光学探测器, 从频域高度重叠的热背景中, 实现对相干太赫兹信号的高效提取.

该方法最早由美国里海大学课题组^[7-9]于 2006 年实现, 他们利用 GaSe, GaP 和 ZnGeP₂ 晶体实现了对差频产生的太赫兹脉冲的探测, 捕获了脉冲宽度 ns 量级的上转换光信号, 最小可探测太赫兹脉冲能量为亚 nJ 量级. 2011 年, 美国麻省理工大学课题组^[10]利用周期反转 GaAs 晶体实现了对返波管 BWO 输出的连续太赫兹波的上转换探测, 并利用高性能的盖革计数器代替普通 p-i-n 二

* 中国科学院青年创新促进会 (批准号: 2019204)、国家自然科学基金 (批准号: 61505089, 61605235) 和中国科学院机器人与智能制造创新研究院自主项目 (批准号: C2019001) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: qifeng@sia.cn

极管, 获得噪声等效功率 $78 \text{ fW/Hz}^{0.5}$. 日本理化研究所 RIKEN 课题组 [11,12] 自 2008 年和 2010 年先后报道基于 LiNbO_3 和有机 DAST 晶体的太赫兹脉冲探测, 且其长期系统性工作引领了世界范围内太赫兹上转换探测领域的发展水平. LiNbO_3 晶体主要用于 3 THz 以下频段 [13–16], DAST 晶体主要用于 3–30 THz 频段. 2014 年他们利用 DAST 晶体在普通 p-i-n 二极管室温下实现了与液氮冷却 Bolometer 相当的探测灵敏度 [17], 利用雪崩光电二极管 APD 并通过噪声抑制, 将灵敏度再提高 2 个数量级 [18], 利用同步双光栅克服了商用滤波片无法兼顾高光密度和大范围调谐的局限, 实现了 1.85–30.00 THz 的宽频段探测 [19]. 2015 年他们以该有源系统为基础, 实现了太赫兹实时成像 [20]. 国内方面, 华中科技大学于 2010 年报道了 LiNbO_3 非共线相位匹配探测的稳态和瞬态模型 [21,22], 并于 2013 年在实验中获得了上转换光信号 [23].

本文报道了基于激光泵浦国产 DAST 晶体的室温、高灵敏、宽频段太赫兹上转换探测, 实现了对太赫兹波脉宽、频率和能量信息的全面表征, 比较了上转换方法与商用热探测的灵敏度和频率响应特性. 结果表明: 室温下的光泵频率上转换探测方法极大地提高了差频有源太赫兹系统的动态范围, 将促进差频源在太赫兹波谱分析等领域的应用.

2 实验装置

激光泵浦 DAST 晶体太赫兹频率上转换探测系统如图 1 所示. 倍频 Nd:YAG 激光器输出 532 nm 绿光脉冲 (10 ns, 10 Hz), 经过隔离器 ISO, 由偏振分束立方体 PBS 分为两束, 分别泵浦两路反射式光学参量振荡器 (OPO). 其中一路为双 KTiOPO_4 (KTP) 晶体组成的 OPO, 图中 KTP 1 与 KTP 2 的尺寸为 $10 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$, 切角 θ 分别为 65° 和 60° , $\varphi = 0^\circ$, 产生 $1.3\text{--}1.6 \mu\text{m}$ 的双波长闲频光, 用于太赫兹差频产生 (称为“差频光”); 另一路为单 KTP 晶体 (图中 KTP3, $10 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$, $\theta = 65^\circ$, $\varphi = 0^\circ$) 组成的 OPO, 产生 $1.3 \mu\text{m}$ 附近的单波长闲频光, 用于频率上转换探测 (称为“探测光”). 差频光经透镜聚焦至发射晶体 DAST 1, 产生频率可调的单色太赫兹波, 由 Ge 基红外长通滤波片 LP 滤除差频光, 经过一对抛物面镜准直并聚焦, 与探测光合束进入探测晶体 DAST 2, 产生波长更长的近红外上转换光, 经带通滤波片组 BP 滤除探测光, 利用 InGaAs 光电二极管 PD (或光谱仪) 间接实现相干太赫兹探测. 用于太赫兹波发射与探测的有机晶体由中国电科 46 所生长 [24], 通光孔径不小于 3 mm, DAST 1 与 DAST 2 的厚度分别为 1.10 mm 和 0.36 mm.

产生波长更长的近红外上转换光, 经带通滤波片组 BP 滤除探测光, 利用 InGaAs 光电二极管 PD (或光谱仪) 间接实现相干太赫兹探测. 用于太赫兹波发射与探测的有机晶体由中国电科 46 所生长 [24], 通光孔径不小于 3 mm, DAST 1 与 DAST 2 的厚度分别为 1.10 mm 和 0.36 mm.

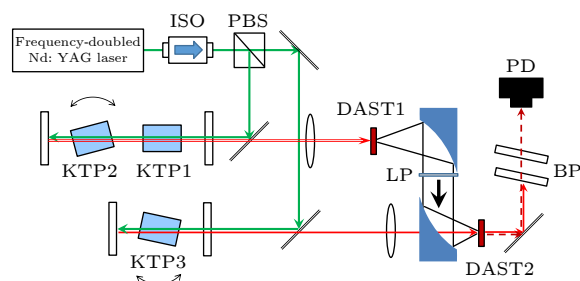


图 1 基于 DAST 晶体太赫兹上转换探测系统示意图
Fig. 1. Schematic diagram of THz-wave up-conversion detection based on DAST crystals.

3 测量结果

利用光电二极管 PD 获得上转换光的典型 (非饱和) 信号如图 2 实线, 脉冲宽度约 2 ns (差频光与探测光脉宽分别为 3.6 ns 和 4.6 ns). 当遮住太赫兹波, 只有探测光照射晶体 DAST 2 时, PD 的响应如图 2 虚线, 本底幅值低于 1 mV, 说明图 2 实线的脉冲响应全部为探测过程新生成的上转换光 (差频光已被 LP 滤除).

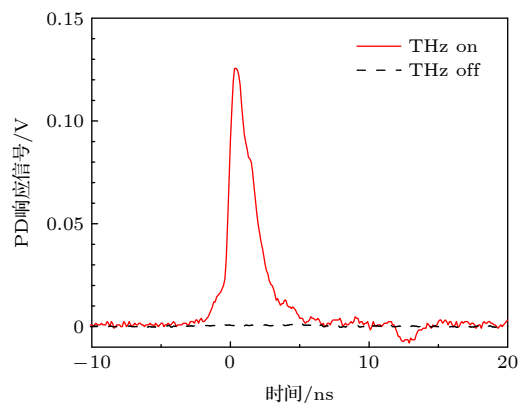


图 2 太赫兹上转换探测光电二极管响应信号
Fig. 2. The up-converted signal acquired by a photo-diode.

在 PD 响应达到饱和的情况下, 利用光谱仪测量上转换光的波长如图 3 所示. 此时, OPO 产生的探测光与差频光波长分别为 1276.5, 1354.5 和 1481.9 nm (图 3 中从左至右 3 个幅值较高的

波长). 幅值较低的波长为新生成的上转换光 (1390.1 nm). 当有、无太赫兹波照射探测晶体 DAST 2 时, 输出光谱的比较如图 3 插图. 根据一对差频光波长计算太赫兹波频率为 19.04 THz, 根据探测光与上转换光波长计算其频率为 19.21 THz, 误差为 0.17 THz, 相对误差小于 1%.

对上转换方法探测灵敏度的测量结果如图 4, 测量频点为 19.04 THz, 探测光波长 1356.42 nm (KTP 3 正入射), 脉冲能量 0.68 mJ, 利用衰减片组改变待测太赫兹能量. 其中衰减倍率 30% (右数第二个“+”) 对应能量下, 商用高莱探测器 (室温下最灵敏的热探测器) 的响应幅值与噪声基线宽度相当 (如图 4 插图). 进一步衰减, 肉眼将无法分辨, 须使用锁相放大器等提取信号. 此时, 由上转换方法获得的 PD 响应幅值为 700 mV, 继续衰减 4 个数量级仍可以观察到响应. 同样为室温运转, 上转

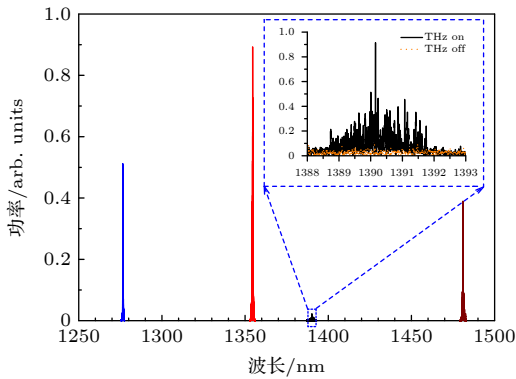


图 3 上转换探测过程中探测光、差频光及上转换光光谱
Fig. 3. Spectra of the detection light, dual-wavelength lights and up-converted light.

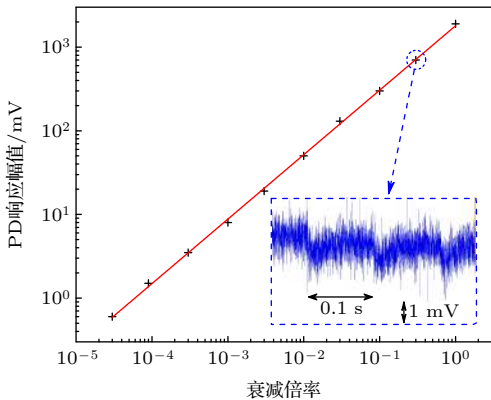


图 4 不同太赫兹能量下的上转换探测响应幅值, 插图为在相应的太赫兹能量下商用高莱探测器的响应幅值
Fig. 4. Relationship between THz input energy and photodiode output. Inset: the output of a Golay Cell at the corresponding THz energy.

换方法的最小能量分辨能力较高莱探测器优 4 个数量级.

上转换探测的频率响应特性如图 5 所示. 保持产生路与探测路 OPO 的泵浦绿光能量不变 (5.15 和 4.86 mJ), 旋转晶体 KTP2, 改变太赫兹波频率 (差频光能量 0.52 mJ@19 THz, 0.57 mJ@4.3 THz); 固定晶体 KTP 3, 根据需要更换带通滤光片组. 四组通带宽度 50 nm 的滤光片共同覆盖探测频段 3.15—29.82 THz. 同等条件下, 高莱探测器获得的 DAST 1 晶体差频发射曲线如图 5 所示.

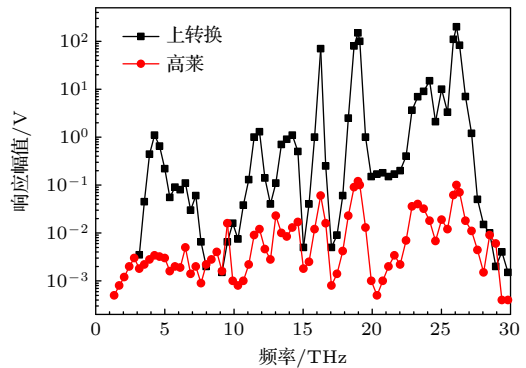


图 5 上转换与热探测获得的差频调谐曲线

Fig. 5. Tuning curves of THz-wave difference frequency generation obtained with up-conversion (squares) and thermal detection (circles).

针对图 5 说明如下: 第一, 受滤光片通带边缘陡度的限制, 更低的探测频率下 (3 THz 以内) 光噪声增大导致上转换探测分辨能力下降; 第二, 在部分强发射频点处 PD 的输出达到饱和 (约 9 V), 此时对上转换光能量衰减再换算得到其响应值; 第三, 上转换方法在 8.00—9.13 THz 频率处存在探测“漏洞”, 原因在于 DAST 晶体 (*a* 轴) 在 8.4 THz 处存在强吸收峰, 吸收强度与 1.1 THz 处的强峰相当^[25]; 第四, 同等条件下, 上转换探测的响应度普遍较高莱探测器高 2—3 个数量级 (DAST 晶体的吸收峰除外).

4 分析和讨论

与此前关于 DAST 晶体太赫兹频率上转换探测的结果^[12,17–19]相比, 本文报道了探测过程生成上转换光谱的测量. 在低重复频率脉冲运转方式下, 利用单模光纤耦合采集到上转换光的谱线, 说明上转换过程的效率很高. 该光谱信息的获得能

够间接表征待测太赫兹波长, 换算结果在误差允许范围内。

从频率响应的测量情况来看, 图 5 与文献 [19] 中图 7 曲线在整体趋势上是接近的, 频率覆盖率和动态范围有所提高. 本文的具体实验方法和条件略有不同: 一方面, 施加的激光脉冲能量更高; 另一方面, 带通滤光片组较文献 [19] 中双光栅的滤光损耗更低. 图 5 中上转换探测的最大动态范围达到了 5 个数量级, 高于此前的 3.3 个数量级. 频率覆盖率方面, 文献 [19] 中的调谐曲线存在多处间断, 包括 9 THz 和 2—23 THz 处的较大间断; 本文实现了 3.15—29.82 THz 频段 (除 8.4 THz 强吸收峰外) 全覆盖, 对其余吸收峰频点 (如 5.0, 12.5, 15.0 和 17.0 THz) 都获得了响应, 特别对 20—22 THz 频段的响应相对高. 在此前关于 DAST 晶体调谐谱的报道中 (包括直接探测 [26—28] 和上转换探测 [19]), 20—22 THz 一直是 DAST 晶体的“发射空白”, 原因在于该频段为晶体的吸收带 [29]. 根据我们推导的理论模型 [5] 分析, 随晶体对太赫兹波的吸收增大, 上转换效率和探测响应度降低. 该频段的吸收系数整体较大, 但与吸收峰位置相比系数值较小, 因此本实验对 20—22 THz 频段的响应获得了明显的提升. 针对 3 THz 以下低频段, 可借鉴文献 [19] 的方法, 配合使用衍射光栅和滤光片等分光元件, 进一步扩展上转换探测的频率下限.

此外, 本系统较室温高莱探测器的分辨能力高 4 个数量级 (图 4), 与文献 [17,18] 普通 p-i-n 二极管探测水平相当. 利用光电倍增管和雪崩光电二极管等放大探测器, 将进一步提高弱光信号的分辨能力. 因此, 频率上转换方法的探测性能还有很大的提升空间.

5 结 论

本文利用激光泵浦国产有机 DAST 晶体通过非线性频率上转换方法, 实现了室温运转的高灵敏、快响应、宽频段太赫兹探测. 获得了 ns 量级的时间分辨, 并能够换算太赫兹波的频率信息, 探测灵敏度较室温最灵敏的商用热探测器高 4 个数量级, 可探测频率覆盖 3.15—29.82 THz. 对于同一套 DAST 晶体差频太赫兹源, 光泵频率上转换方法将传统热探测器获得的动态范围普遍提高了 2—3 个数量级, 使差频源在太赫兹波谱分析和成像等领域具有更大的应用潜力.

参考文献

- [1] Zhang C 2008 *Terahertz Sensing and Imaging* (Beijing: National Defense Industry Press) pp1–5 (in Chinese) [张存林 2008 太赫兹感测与成像 (北京: 国防工业出版社) 第1—5页]
- [2] Liu Z Y, Qi F, Wang Y L, Liu P X, Li W F 2019 *J. Infrared Milli. Terahz. Waves* **40** 606
- [3] Li Y F, Zhang Y T, Li T T, Li M Y, Chen Z L, Li Q Y, Zhao H L, Sheng Q, Shi W, Yao J Q 2020 *Nano Lett.* **20** 5646
- [4] Lu W L, Lou S Q, Wang X, Shen Y, Sheng X Z 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 114206 (in Chinese) [鹿文亮, 姜淑琴, 王鑫, 申艳, 盛新志 2015 物理学报 **64** 114206]
- [5] Liu P X, Qi F, Li W F, Liu Z Y, Wang Y L, Shi W, Yao J Q 2018 *J. Infrared Milli. Terahz. Waves* **39** 1005
- [6] Chai L, Niu Y, Li Y F, Hu M L, Wang Q Y 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 070702 (in Chinese) [柴路, 牛跃, 栗岩峰, 胡明列, 王清月 2016 物理学报 **65** 070702]
- [7] Shi W, Ding Y J, Fernelius N, Hopkins F K 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 101101
- [8] Ding Y J, Shi W 2006 *Sol. State Electron.* **50** 1128
- [9] Ding Y J, Shi W 2006 *Opt. Express* **14** 8311
- [10] Khan M J, Chen J C, Liau Z L, Kaushik S 2011 *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **17** 79
- [11] Guo R, Ikari T, Minamide H, Ito H 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 021106
- [12] Minamide H, Zhang J, Guo R, Miyamoto K, Ohno S, Ito H 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 121106
- [13] Minamide H, Hayashi S, Nawata K, Taira T, Shikata J, Kawase K 2014 *J. Infrared Milli. Terahz. Waves* **35** 25
- [14] Kato M, Tripathi S R, Murate K, Imayama K, Kawase K 2016 *Opt. Express* **24** 6425
- [15] Tripathi S R, Sugiyama Y, Murate K, Imayama K, Kawase K 2016 *Opt. Express* **24** 6433
- [16] Takida Y, Nawata K, Suzuki S, Asada M, Minamide H 2017 *Opt. Express* **25** 5389
- [17] Qi F, Nawata K, Hayashi S, Notake T, Matsukawa T, Minamide H 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 031110
- [18] Qi F, Fan S, Notake T, Nawata K, Matsukawa T, Takida Y, Minamide H 2014 *Opt. Lett.* **39** 1294
- [19] Qi F, Fan S, Notake T, Nawata K, Matsukawa T, Takida Y, Minamide H 2014 *Laser Phys. Lett.* **11** 085403
- [20] Fan S, Qi F, Notake T, Nawata K, Takida Y, Matsukawa T, Minamide H 2015 *Opt. Express* **23** 7611
- [21] Jiang C Y, Liu J S, Sun B, Wang K J, Yao J Q 2010 *J. Opt.* **12** 045202
- [22] Jiang C Y, Liu J S, Sun B, Wang K J, Li S X, Yao J Q 2010 *Opt. Express* **18** 18180
- [23] Jiang C Y 2013 *Ph. D. Dissertation* (Wuhan: Huazhong University of Science and Technology) (in Chinese) [蒋呈阅 2013 博士学位论文 (武汉: 华中科技大学)]
- [24] Wu C, Meng D L, Pang Z B, Xu Y K, Cheng H J 2017 *Piezoelectrics & Acousto-optics* **39** 722 (in Chinese) [武聪, 孟大磊, 庞子博, 徐永宽, 程红娟 2017 压电与声光 **39** 722]
- [25] Cunningham P D, Hayden L M 2010 *Opt. Express* **18** 23621
- [26] Takahashi Y, Adachi H, Tanuchi T, Takagi M, Hosokawa Y, Onzuka S, Brahadeeswaran S, Yoshimura M, Mori Y, Masuhara H, Sasaki T, Nakanishi H 2006 *J. Photochem. Photobiol., A* **183** 247
- [27] Ito H, Suizu K, Yamashita T, Nawahara A, Sato T 2007 *Jpn. J. Appl. Phys.* **46** 7321
- [28] Liu P X, Qi F, Pang Z B, Li W F, Lai Z P 2018 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51** 395102
- [29] Bosshard Ch, Spreiter R, Degiorgi L, Gunter P 2002 *Phys. Rev. B* **66** 205107

Terahertz wave up-conversion detection based on organic nonlinear optical crystals*

Liu Peng-Xiang¹⁾³⁾ Li Wei¹⁾³⁾⁴⁾ Guo Li-Yuan¹⁾³⁾ Qi Feng^{1)3)†} Pang Zi-Bo²⁾
Li Wei-Fan¹⁾³⁾ Wang Ye-Long¹⁾³⁾ Liu Zhao-Yang¹⁾³⁾

1) (*Key Laboratory of Opto-Electronic Information Processing, Shenyang Institute of Automation, Chinese Academy of Sciences, Shenyang 110169, China*)

2) (*The 46th Research Institute of China Electronics Technology Group Corporation, Tianjin 300220, China*)

3) (*Institutes for Robotics and Intelligent Manufacturing, Chinese Academy of Sciences, Shenyang 110169, China*)

4) (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

(Received 12 November 2020; revised manuscript received 7 December 2020)

Abstract

Laser pumped terahertz (THz) wave up-conversion detection with high sensitivity, fast responsivity and wide frequency band is achieved at room temperature, based on home-made organic nonlinear crystals 4-N,N-dimethylamino-4'-N'-methyl-stilbazolium tosylate (DAST). Green laser pulses pumped KTiOPO₄ optical parametric oscillators are utilized as the sources of dual-wavelength near-infrared (NIR) beams (1.3–1.6 μm, for THz-wave difference frequency generation (DFG)) and a single NIR beam (1.2–1.4 μm, for up-conversion detection). The nonlinear medium for both THz-DFG and detection is DAST (grown by CETC-46). A nanosecond-time-resolved THz pulse is obtained with an InGaAs p-i-n photo-diode. The spectrum of the up-converted NIR light is acquired, which allows us to measure the THz frequency indirectly. The sensitivity (also at room temperature) is 4 orders better at 19 THz than the sensitivity of a commercial thermal detector (Golay Cell). The wide frequency band operation is realized with different sets of band-pass filters, which cover the entire range from 3.15 to 29.82 THz except 8.4 THz of the strong absorption peak of DAST. The dynamic range of a THz source based on DFG can be commonly improved by 2–3 orders, by changing the traditional thermal detector with the up-conversion detection. The presented technology can promote the applications of DFG THz source in the fields of high-resolution spectroscopy and imaging.

Keywords: terahertz-wave detection, nonlinear optics, organic nonlinear crystal, frequency up-conversion

PACS: 07.57.Kp, 42.65.-k, 42.70.Jk, 42.79.Nv

DOI: [10.7498/aps.70.20201908](https://doi.org/10.7498/aps.70.20201908)

* Project supported by Youth Innovation Promotion Association of Chinese Academy of Sciences (Grant No. 2019204), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61505089, 61605235), and the Independent Project of Institutes for Robotics and Intelligent Manufacturing, Chinese Academy of Sciences (Grant No. C2019001).

† Corresponding author. E-mail: qifeng@sia.cn