

## 磷化镓高功率太赫兹共线差频源的研究\*

黄敬国 陆金星 周炜 童劲超 黄志明<sup>†</sup> 褚君浩

(中国科学院上海技术物理研究所, 红外国家重点实验室, 上海 200083)

(2013年1月30日收到; 2013年3月1日收到修改稿)

在众多实现太赫兹辐射的方法中, 非线性光学共线差频能够实现高功率、宽波段、连续可调谐的太赫兹波辐射. 理论分析表明, 各向同性磷化镓晶体, 在 1064 nm 附近波长激光共线差频下具有毫米量级的相干长度, 能够满足高功率宽波段的太赫兹辐射条件. 实验证明, 磷化镓晶体共线差频实现高功率宽波段的太赫兹光辐射, 其太赫兹光波长调谐范围为 95.9—773.4  $\mu\text{m}$  (0.39—3.13 THz), 最高峰值功率 7 W 位于频率 2.0 THz 处. 该实验结果与理论计算基本保持一致.

关键词: 太赫兹源, 磷化镓, 共线差频

PACS: 07.57.Hm, 42.65.-k, 42.79.Nv

DOI: 10.7498/aps.62.120704

## 1 引言

太赫兹光作为微波与红外之间的连接桥梁, 由于其独特的光学性质及其潜在的应用背景, 吸引了各国政府、企业界、科研工作者的极大兴趣, 被誉为本世纪的“前沿革命”<sup>[1]</sup>.

运用非线性光学效应产生太赫兹光辐射<sup>[2]</sup>, 是高功率太赫兹光源研究领域中的热点之一. 在众多固体光电技术产生太赫兹光辐射的方法中, 基于飞秒超快激光引起的光电导、光整流效应所产生的太赫兹时域系统<sup>[3]</sup>已经趋于成熟, 能够对各种物质化学爆炸物及生物大分子系统进行快速光谱成像识别. 由于它是一种时域转化的方法, 满足不了太赫兹光在星际传输、太赫兹通信等应用需求. 近年来通过铌酸锂晶体受激极化声子参量效应(参量产生、参量振荡、注入种子的参量振荡)产生高功率、宽波段、可调谐的太赫兹光辐射<sup>[4-7]</sup>, 已取得一系列较为满意的实验结果(如脉冲峰值功率已提高到 100 mW 量级). 但是由于铌酸锂晶体具有强烈的太赫兹吸收, 这一性质制约了太赫兹功率的进一步提高.

基于光学差频原理在非线性光学晶体中实现

高功率宽波段的相干太赫兹波辐射, 具有结构紧凑、调节简单、无阈值限制、输出功率高、调谐波段宽、可室温工作等优点<sup>[8]</sup>, 已被众多科研工作者所采用. 目前主要使用的太赫兹非线性晶体主要包括: 硒化镓<sup>[9,10]</sup>、磷锗锌<sup>[11,12]</sup>、DAST<sup>[13,14]</sup>、砷化镓<sup>[15]</sup>、磷化镓<sup>[11,16]</sup>. 按照其相位匹配方式划分, 大致分为四种类型: 双折射共线相位匹配、各向同性非共线相位匹配、各向同性共线相位匹配以及准相位匹配. 磷化镓晶体属于各向同性 III-V 族半导体材料, 具有闪锌矿结构, 空间群为  $T_{24m}$ , 透明光谱波段为 0.55—1.6  $\mu\text{m}$ , 具有较大的二阶非线性光学系数  $d_{14}$  (75 pm/V) 以及较小的太赫兹波吸收系数(频率低于 2 THz 约  $2\text{ cm}^{-1}$ )<sup>[17]</sup>. 由于磷化镓材料为各向同性半导体, 在晶体内部没有“o”光、“e”光之分, 不可能像双折射材料一样严格满足共线相位匹配条件. 因此, 早期关于磷化镓太赫兹光差频的研究工作, 基本上局限于非共线相位匹配<sup>[17-21]</sup>领域. 然而, 由于磷化镓晶体在 1064 nm 附近波长区域有较大的晶体相干长度, 满足共线差频产生高功率太赫兹光的辐射条件<sup>[11,16,22]</sup>, 近来也被人们所关注. 除此以外, 准相位匹配方式在磷化镓太赫兹共线差频实验中也取得很好的实验进展<sup>[20,23]</sup>. 准相位匹配具体是指采用多片非常薄的晶圆晶面反向叠加

\* 国家自然科学基金(批准号: 61274138)和中国科学院上海技术物理研究所三期创新专项(批准号: Q-ZY-44)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯作者. E-mail: zmhuang@mail.sitp.ac.cn

压片而成, 形成具有正负周期反转的二阶非线性光学常数阵列 [23]. 该相位匹配模式产生的最高脉冲太赫兹峰值功率为 kW 量级, 但是由于缺乏成熟的压片工艺设备, 还不能实现该材料的大规模商业化生产. 国内也已经对对各向同性晶体共线差频产生太赫兹波的理论研究 [24,25], 但是几乎没有类似实验报道. 由于共线相位匹配与非共线相位匹配模式相比, 具有更加简单的波长调谐方式——其太赫兹光输出波长与入射光夹角无关 [11], 进一步增强了系统的机械稳定性. 本文首先从理论上对磷化镓晶体相干长度以及太赫兹辐射功率进行研究, 其次从实验上对 1 mm 长磷化镓晶体共线太赫兹差频源进行报道.

## 2 磷化镓晶体太赫兹共线差频理论分析

### 2.1 相干长度计算

相干长度是衡量三波相位匹配程度的重要物理量. 在各向同性磷化镓晶体中, 不同的激光抽运波长具有不同的晶体相干长度. 选择合适的抽运激光波长, 对高功率太赫兹光的产生具有重要作用. 已有理论分析表明, 磷化镓晶体在 1064 nm 附近波长激光共线差频时, 具有较大的晶体相干长度 (毫米量级) [26], 这意味着可以通过共线差频相位匹配方式实现高功率宽波段的太赫兹光辐射. 下面我们详细分析在 1064 nm 波长附近激光差频作用时, 磷化镓晶体的相干长度随太赫兹光波长的函数关系.

磷化镓晶体共线差频辐射太赫兹光, 这一物理过程必须要满足两个基本条件: 光子能量守恒和动量守恒, 具体由下述公式表示:

$$\frac{1}{\lambda_T} = \frac{1}{\lambda_p} - \frac{1}{\lambda_s}, \quad (1a)$$

$$k_T = k_p - k_s, \quad (1b)$$

其中  $\lambda_p$ ,  $\lambda_s$ ,  $\lambda_T$  分别为抽运光、信号光、太赫兹光的波长, 而  $k_p$ ,  $k_s$ ,  $k_T$  则分别对应于这三种光的光子动量大小.

求解 (1) 式可得

$$\frac{n_T}{\lambda_T} = \frac{n_b}{\lambda_b}, \quad (2)$$

其中  $n_b = n_p - \frac{\lambda_p}{\lambda_p - \lambda_s}(n_p - n_s)$ ,  $\lambda_b = \left(\frac{1}{\lambda_p} - \frac{1}{\lambda_s}\right)^{-1}$ ,  $\lambda_b$  为抽运光和信号光形成的拍频光波长,  $n_b$  则为

该拍频光在晶体中的相应折射率大小. 显然, 此时拍频光波长与太赫兹光波长相等. 从 (2) 式中可以看出来, 只要太赫兹光在晶体中的折射率与拍频光在晶体中的折射率相等, (1) 式将严格成立, 晶体就会产生高功率的太赫兹光辐射. (2) 式的物理意义在于, 把三波相互作用等效转化为两波之间的相互作用, 亦即实际太赫兹波辐射的功率来源于拍频光波向太赫兹光波功率之间的转换.

定义相干长度

$$L_c = \frac{\pi}{\Delta k} = \frac{\pi}{2} \lambda_T / (n_b - n_T), \quad (3)$$

它反映了晶体拍频光折射率与太赫兹光折射率之间的差异性. 当完全相位匹配时 ( $\Delta k = 0$ ), 相干长度趋向无穷大. 事实上, 只要相干长度数值足够大 (毫米量级), 大于实际晶体长度, 就满足产生高功率太赫兹光辐射的必要条件.

磷化镓晶体在近红外处的折射率系数可由 Sellmeier 方程 [27] 给出:

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

其中系数  $A = 4.1705$ ,  $B = 4.9113$ ,  $C = 0.1174$ ,  $D = 1.9928$ ,  $E = 756.46$ .

在太赫兹波段, 折射率系数  $n$  可由横向光学声子 [28] 振动吸收决定:

$$(n + i\kappa)^2 = \epsilon_\infty + \frac{\rho v_{TO}^2}{v_{TO}^2 - v^2 - i\gamma v}, \quad (5)$$

其中具体参数  $\epsilon_\infty = 9.07$ ,  $\rho = 1.945$ ,  $v_{TO} = 367 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\gamma = 9.0 \text{ cm}^{-1}$ .

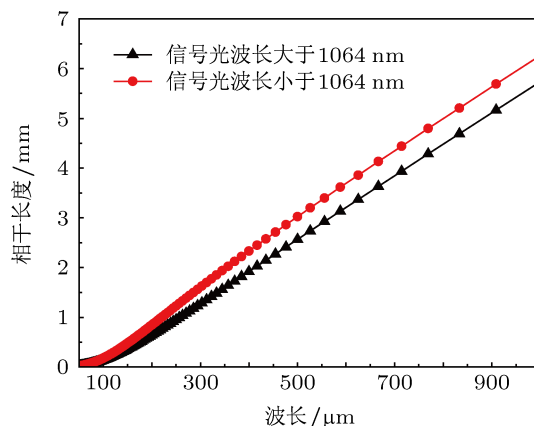


图 1 磷化镓晶体在 1064 nm 附近的相干长度随太赫兹波长的函数关系

结合上述方程, 计算了磷化镓晶体在 1064 nm 附近波长激光差频作用时, 晶体相干长度随太赫兹光波长之间的函数关系, 如图 1 所示. 我们分别讨

论信号光波长在大于 1064 nm 和小于 1064 nm 时的晶体相干长度随太赫兹波长的变化关系. 从图 1 中可以看出, 在这两区域磷化镓晶体都具有毫米量级的相干长度, 满足高功率太赫兹共线差频产生的必要条件. 此外, 在信号光波长小于 1064 nm 一侧产生的相干长度比另外一侧要略大, 这表明在此区域产生的太赫兹光功率将比另外一侧略大.

## 2.2 太赫兹波辐射功率分析

在平面波近似下, 辐射产生的太赫兹光波功率表达式为 [16]

$$P_3 = \frac{2\omega_3^2 d^2 L^2 P_1 P_2}{\epsilon_0 c^3 n_1 n_2 n_3 \pi r^2} T_1 T_2 T_3 S, \quad (6)$$

$$S = e^{-\alpha_3 L} \frac{1 + e^{-\Delta\alpha L} - 2e^{-\frac{\Delta\alpha L}{2}} \cos(\Delta k L)}{(\Delta k L)^2 + \left(\frac{\Delta\alpha L}{2}\right)^2},$$

$$\Delta\alpha = |\alpha_1 - \alpha_2 - \alpha_3|,$$

式中各参数具体含义如下:  $P$  为激光功率,  $n$  为折射系数,  $T$  为材料的透射率,  $\omega_3$  为太赫兹光频率,  $d$  为二阶有效非线性光学系数,  $L$  为晶体长度,  $\epsilon_0$  为真空介电常数,  $c$  为光速,  $r$  为光斑半径,  $\alpha$  为晶体吸收系数,  $\Delta k$  为相位失配量, 下标 1, 2, 3 分别对应抽运光、信号光以及太赫兹光.

根据 (6) 式, 我们理论计算了在信号光波长大于 1064 nm 时磷化镓晶体长度分别为 0.1, 0.2, 0.5 及 1 cm 条件下共线差频所辐射出的太赫兹光功率强度光谱分布, 如图 2 所示. 由图 2 可知, 在相同的入射激光功率下, 晶体长度越大, 晶体所辐射的太赫兹光功率将增大, 且产生的太赫兹光最高峰值功率波长具有明显的红移规律. 因此改变磷化镓晶体长度, 我们可以实现一系列覆盖 3 THz 以下高功率

宽波段的太赫兹源.

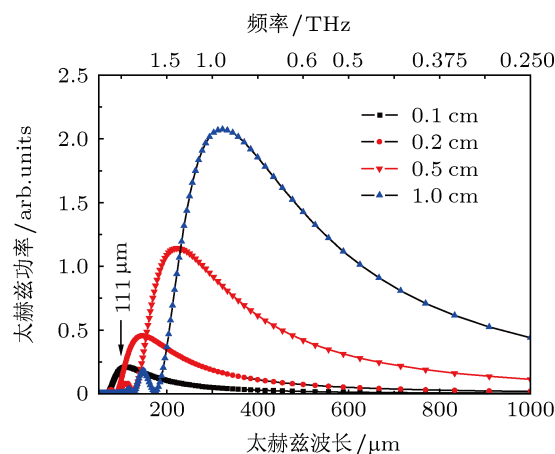


图 2 理论计算不同长度下磷化镓晶体辐射太赫兹光强度光谱

## 3 实验结果与分析

### 3.1 磷化镓晶体共线差频实验

我们利用 Nd:YAG 纳秒脉冲 1064 nm 高功率激光作为磷化镓晶体共线差频的抽运光, 及其三倍频抽运产生的波长连续可调谐参量振荡源 (OPO) 作为差频实验的信号光源. 实验中具体使用激光参数如下: 1064 nm 激光, 脉冲时间 7.8 ns, 频率 10 Hz, 线宽  $0.003 \text{ cm}^{-1}$ , 光斑直径 3 mm, 功率 35 mW; 可调谐参量振荡源, 波长调谐范围 1048—1080 nm, 频率 10 Hz, 线宽  $0.075 \text{ cm}^{-1}$ , 脉冲时间 3.8 ns, 光斑直径 3.5 mm, 抽运功率 30 mW. 实验中使用 (110) 晶向双面抛光 1 mm 本征磷化镓晶体, 具体光路如图 3 所示. 1064 nm 激光经反射镜、滤光片、半波片、偏振片后, 水平偏振地透过孔径光阑垂直入射到磷化镓晶体表面; OPO 输出光束经反射镜、半波片、偏振片后, 垂直偏振地入射到晶体表面. 这两束激

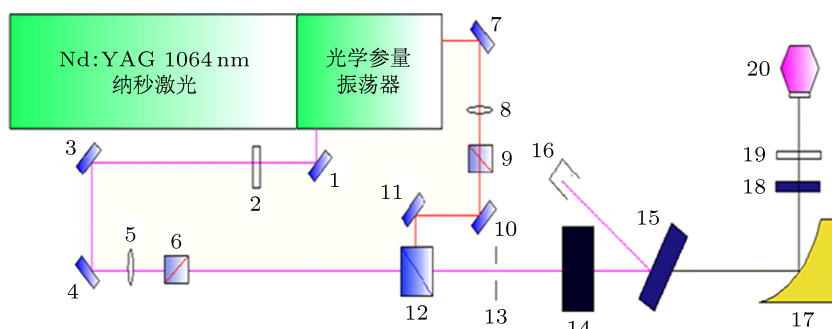


图 3 磷化镓晶体共线太赫兹差频产生实验光路图 1, 3, 4, 7, 10, 11 为激光反射镜; 2 为滤光片; 5, 8 为半波片; 6, 9 为偏振片; 12 为偏振分光棱镜; 13 为孔径光阑; 14 为 GaP 晶体; 15, 18 为锗镜; 16 为光吸收器; 17 为镀金离轴抛物面镜; 19 为聚乙烯窗口片; 20 为液氮硅测辐射热计

光光束在空间上由偏振分束棱镜调成完全重合,在时间上也由额外的延迟光路调成完全同步.实验中产生的太赫兹光信号经抛物面镜反射收集,最终被液氮制冷硅测辐射热计探测所得,而原光路中的近红外激光信号则被锗镜、聚乙烯镜反射和吸收.

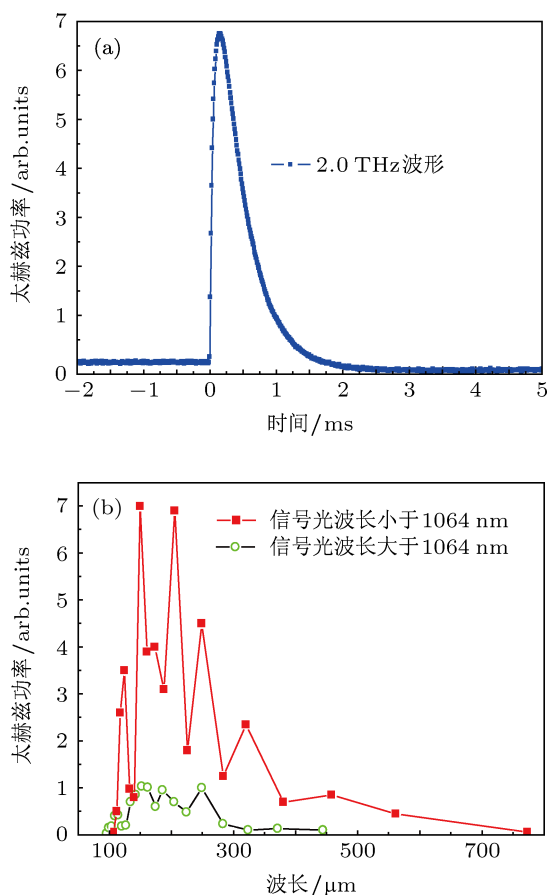


图4 磷化镓晶体共线差频太赫兹辐射功率 (a) 液氮测辐射热计探测 2.0 THz 波形图; (b) 磷化镓晶体辐射太赫兹功率光谱图, 其中方点为信号光波长大于 1064 nm, 中空圆点为信号光波长小于 1064 nm 时探测太赫兹功率图谱

### 3.2 实验结果与分析

实验发现, OPO 输出激光波长在 1064 nm 两侧均能产生高功率、宽波段的太赫兹光辐射, 总的波长调谐范围为 95.9—773.4  $\mu\text{m}$  (0.39—3.13 THz), 最高峰值功率 7 W 位于 2.0 THz 处 (脉冲波形由液氮测辐射热计探测所得, 如图 4(a) 所示), 线宽优于  $0.08 \text{ cm}^{-1}$ . 当 OPO 输出激光波长大于 1064 nm 时, 晶体辐射产生的太赫兹光调谐范围为 95.9—444.2  $\mu\text{m}$  (对应 OPO 输出波长 1067—1076.4 nm),

最高峰值功率 1 W 位于 152.5  $\mu\text{m}$  (约 2.0 THz) 处. 当 OPO 输出激光波长小于 1064 nm 时, 晶体辐射产生的太赫兹光波长范围为 107.3—773.4  $\mu\text{m}$  (对应 OPO 输出波长 1054—1063 nm), 最高峰值功率 7 W 位于 150.2  $\mu\text{m}$  (2.0 THz) 处. 在该实验中, 我们发现磷化镓晶体辐射太赫兹光功率在 OPO 波长小于 1064 nm 处要比另外一侧高 7 倍. 我们认为这是由于磷化镓晶体在该区域具有更大的相干长度, OPO 激光在该区域作为抽运光时具有更高的功率密度, 以及实验上两光斑的非完全重合性等因素造成的. 其次, 理论计算 1 mm 磷化镓晶体共线差频产生的太赫兹光最大峰值功率位于波长 111  $\mu\text{m}$  (2.7 THz), 与实验结果 2.0 THz 略有偏差. 我们认为该偏差主要未考虑到实际空气中水汽分子的太赫兹“指纹谱线”吸收, 光斑功率密度分布的非均匀性, OPO 信号光波长采样间距的非精细性, 以及实际激光光源功率的抖动性 (其中 OPO 功率稳定为  $\pm 2\%$ , 脉冲时间稳定性  $\pm 1\%$ ). 图 4(b) 中部分数据振荡一方面基于太赫兹光在晶体前后表面的干涉, 另一方面则来自空气中的水汽强吸收.

### 4 结论

我们利用 1064 nm 纳秒激光器及其可调波长参量振荡器在 1 mm (110) 磷化镓晶体中, 共线差频产生高功率、宽波段、准连续调谐的相干太赫兹光辐射. 理论计算表明: 磷化镓晶体在 1064 nm 附近波长激光差频作用时具有毫米量级的相干长度, 满足高功率太赫兹光辐射的必要条件. 对不同晶体长度的太赫兹光辐射功率进行理论计算, 发现太赫兹光辐射功率随晶体长度增加而增强, 且太赫兹光峰值功率处波长呈现红移趋势. 实验证实, 磷化镓晶体共线差频可以实现高功率、宽波段、连续可调谐的相干太赫兹光辐射, 其波长调谐范围为 95.9—773.4  $\mu\text{m}$  (0.39—3.13 THz), 最高峰值功率 7 W 位于频率 2.0 THz 处. 排除下列实验因素的影响: 入射激光功率的抖动性, 空气中水汽的太赫兹指纹吸收, 光斑功率密度非均匀分布, 以及两束光斑的非完全重合性等实验因素, 实验测量与理论计算基本符合.

- [1] Zhang C L 2008 *Terahertz Sensing and Imaging* (1st Ed.) (Beijing: National Defence Industry Press) p1 (in Chinese) [张存林 2008 太赫兹感测与成像 (第一版) (北京: 国防工业出版社) 第 1 页]
- [2] Sun B, Yao J Q 2006 *Chin. J. Lasers* **33** 1349 (in Chinese) [孙博, 姚建铨 2006 中国激光 **33** 1349]
- [3] Grischkowsky D, Keiding S, Vanexter M, Fattinger C 1990 *J. Opt. Soc. Am. B* **7** 2006
- [4] Kawase K, Shikata J, Ito H 2002 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **35** R1
- [5] Sato A, Kawase K, Minamide H, Wada S, Ito H 2001 *Rev. Sci. Instrum.* **72** 3501
- [6] Imai K, Kawase K, Shikata J, Minamide H, Ito H 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 1026
- [7] Kawase K, Shikata J, Imai K, Ito H 2001 *Appl. Phys. Lett.* **78** 2819
- [8] Lu J X, Huang Z M, Huang J G, Wang B B, Shen X M 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 024209 (in Chinese) [陆金星, 黄志明, 黄敬国, 王兵兵, 沈学民 2011 物理学报 **60** 024209]
- [9] Shi W, Ding Y J, Fernelius N, Vodopyanov K 2002 *Opt. Lett.* **27** 1454
- [10] Shi W, Leigh M, Zong J, Jiang S B 2007 *Opt. Lett.* **32** 949
- [11] Ding Y J 2007 *IEEE J. Sel. Top. Quant.* **13** 705
- [12] Shakir Y A, Sorochenko V R, Gribenyukov A I 2010 *Phys. Wave. Phenom.* **18** 240
- [13] Taniuchi T, Okada S, Nakanishi H 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 5984
- [14] Suizu K, Miyamoto K, Yamashita T, Ito H 2007 *Opt. Lett.* **32** 3
- [15] Vodopyanov K L, Avetisyan Y H 2008 *Opt. Lett.* **33** 2314
- [16] Taniuchi T, Nakanishi H 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 7588
- [17] Saito K, Tanabe T, Oyama Y, Suto K, Kimura T, Nishizawa J 2008 *J. Phys. Chem. Solids* **69** 597
- [18] Nishizawa J, Suto K, Sasaki T, Tanabe T, Tanno T, Oyama Y, Sato F 2006 *P. Jpn. Acad. B Phys.* **82** 353
- [19] Aleshkin V Y, Antonov A A, Gaponov S V, Dubinov A A, Krasil'nik Z F, Kudryavtsev K E, Spivakov A G, Yablonskii A N 2008 *JETP Lett.* **88** 787
- [20] Ding Y J, Jiang Y, Zotova I B 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 031101
- [21] Ragam S, Tanabe T, Saito K, Oyama Y, Nishizawa J 2009 *J. Lightwave Technol.* **27** 3057
- [22] Ding Y J, Shi W 2006 *Solid State Electron.* **50** 1128
- [23] Tomita I, Suzuki H, Rungsawang R, Ueno Y, Ajito K 2007 *Phys. Status Solidi A* **204** 1221
- [24] Sun B, Yao J Q, Wang Z, Wang P 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 1390 (in Chinese) [孙博, 姚建铨, 王卓, 王鹏 2007 物理学报 **56** 1390]
- [25] Li Z Y, Yao J Q, Li J, Bing P B, Xu D G, Wang P 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 6237 (in Chinese) [李忠洋, 姚建铨, 李俊, 邴丕彬, 徐德刚, 王鹏 2010 物理学报 **59** 6237]
- [26] Pradarutti B, Matthaus G, Riehemann S, Notni G, Nolte S, Tunnermann A 2008 *Opt. Commun.* **281** 5031
- [27] Madarasz F L, Dimmock J O, Dietz N, Bachmann K J 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 1564
- [28] Palik E D 1998 *Handbook of Optical Constants of Solids* (Vol. III) (San Diego: Academic Press) pp32–40

# Investigation of high power terahertz emission in gap crystal based on collinear difference frequency generation\*

Huang Jing-Guo Lu Jin-Xing Zhou Wei Tong Jing-Chao Huang Zhi Ming<sup>†</sup>  
Chu Jun-Hao

(Key Laboratory of Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China)

(Received 30 January 2013; revised manuscript received 1 March 2013)

## Abstract

Among many terahertz wave generation methods, nonlinear optical collinear difference frequency generation (CDFG) is always regarded as a promising way to achieve the high power, broadband, continual tunable terahertz wave emission. Theoretical analysis shows that a big coherent length (on millimeter scale) in isotropic GaP crystal could be realized by the laser wavelength near 1064 nm in the CDFG process, which meets the condition of high power and broadband terahertz generation. In the experiment, a high power and broadband terahertz wave is achieved from GaP crystal, with its tunable terahertz range 95.9–773.4  $\mu\text{m}$  (0.39–3.13 THz) and the highest terahertz peak power 7 W at 2 THz. The experimental result is generally consistent well with its theoretical calculation.

**Keywords:** terahertz source, GaP, collinear difference frequency generation

**PACS:** 07.57.Hm, 42.65.–k, 42.79.Nv

**DOI:** 10.7498/aps.62.120704

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61274138) and the Innovational Program of Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, China (Grant No. Q-ZY-44).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: zmhuang@mail.sitp.ac.cn