

相位失配与材料吸收对利用 GaSe 差频产生太赫兹波功率影响的研究*

陆金星 黄志明[†] 黄敬国 王兵兵 沈学民

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

(2010年4月20日收到; 2010年5月8日收到修改稿)

从理论上分析了相位失配与材料吸收在利用 GaSe 非线性差频产生太赫兹 (THz) 波中的影响, 计算得到了 4 种不同情况下的晶体最佳长度值和相应 THz 最大功率, 计算了角度失配对于相位失配的影响, 计算结果为非线性光学差频实验提供了重要参考依据和理论设计基础.

关键词: 太赫兹波, GaSe 晶体, 相位失配, 材料吸收

PACS: 42.65.-k, 42.65.Ky

1. 引言

太赫兹 (THz) 波通常是指频率在 0.1—10 THz (30—3000 μm) 范围内的电磁波, 由于 THz 波在物理、天文、大气遥感、医学成像、安检等领域的应用价值, 近年来成为研究的一个热点^[1-4]. 在产生 THz 波的方法上, 非线性光学差频方法由于具有可调谐、高功率和室温工作环境等优点受到了国内外科研人员的大量关注, 利用 GaSe^[5-8], ZnGeP₂^[9], LiNbO₃^[10], GaP^[11,12], GaAs^[13], DAST^[14] 等晶体已经产生了很宽范围的 THz 波.

利用非线性光学差频方法产生 THz 波需要选择合适的晶体种类以及晶体参数. 在诸多非线性晶体中, 负单轴晶体 GaSe 以其较大的二阶非线性系数 ($d_{22} = 54 \text{ pm/V}$), 双折射率差 ($\Delta n \geq 0.3$) 和在 THz 波段很小的吸收系数^[5] 等特性得到较多的实验应用. 但已有的研究报道结果存在较大差别, Shi 等使用不同光轴长度 (4^[5], 7^[5], 15^[5], 20^[6] 和 47 mm^[15]) 的 GaSe 进行非线性差频产生了 THz 波, 当使用 47 mm 长度的 GaSe 时 THz 波最高峰值功率达到 389 W (1.48 THz)^[15]; 而 Tanabe 等^[7] 使用 GaSe 差频只获得了峰值功率 15 mW 左右的实验结果; Zhang 等^[8] 也重复了 Shi 的实验, 选用 0.5, 2.4, 8

mm 光轴长度的 GaSe 进行实验, 获得了峰值功率 17.3 W (3.07 THz) 的 THz 波 (2.4 mm 光轴长度), 同时发现光轴长度为 0.5 mm 的实验结果要优于光轴长度为 8 mm 的, 从而得到晶体长度不一定要很长的结论. 因此需要进一步研究影响差频结果的原因.

现阶段关于非线性光学差频的理论已经确立, 国内也有一些基本的理论研究^[16-18], 但有关技术方法实际应用的文献还相当匮乏, 其中吸收系数等因素对差频产生的 THz 功率的影响, 以及确定晶体最佳长度的方法还未见文献报道. 本文结合已有的二阶三波相互作用理论, 分析了相位失配与材料吸收在利用 GaSe 晶体 oee 共线相位匹配方式差频生成 THz 过程中的影响, 计算得到了在不同情况下的晶体最佳长度值、所对应的 THz 相对最大功率、角度失配对于相位失配的影响, 并与文献[8]的结果进行验证对比. 研究结果对于使用非线性光学差频作用产生 THz 波实验提供了理论设计基础和实验参数依据.

2. 相位失配与材料吸收对差频功率影响的分析

这里设两路进行非线性光学作用的差频波波

* 中国科学院重大科研装备研制项目 (批准号: YZ200835) 和上海市优秀学科带头人基金 (批准号: 10XD1404800) 资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: zmhuang@mail.sitp.ac.cn

长分别为 λ_1, λ_2 , 所产生的 THz 波波长为 λ_3 . 根据我们使用的激光器, 本文中 $\lambda_1 = 1.06415 \mu\text{m}, \lambda_2 = 1.0660\text{—}1.0834 \mu\text{m}$ 可调. 由能量守恒定理 $\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} = \frac{1}{\lambda_3}$, 所产生的 THz 波长 λ_3 在 $60\text{—}600 \mu\text{m}$ 范围内. 使用 oee 共线相位匹配方式配置, 即相对于 GaSe 光轴 (z 轴), λ_1 波长激光取 o 偏振方向, λ_2 波长激光取 e 偏振方向, 生成的 THz 波为 e 偏振方向 (注: 使用 GaSe 晶体 oee 共线匹配方式不能产生频率大于 6 THz 的差频信号^[5]), 如图 1 所示.

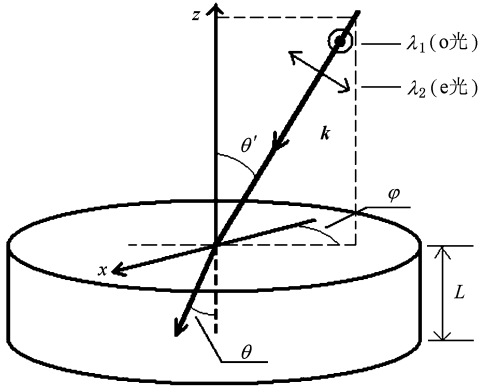


图 1 使用 GaSe 晶体进行非线性光学差频作用示意图

根据二阶三波相互作用理论, 得到差频产生的 THz 波功率计算公式^[19]

$$P_{\omega_3} = \frac{1}{2} \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \right)^{\frac{1}{2}} \frac{4\pi^2 (2d_{\text{eff}})^2 L^2}{n_1 n_2 n_3 \lambda_3^2} \left(\frac{P_{\omega_1} P_{\omega_2}}{\pi r^2} \right) T_1 T_2 T_3 e^{-\alpha_3 L} \times \frac{1 + e^{-\Delta\alpha \cdot L} - 2e^{-\frac{1}{2}\Delta\alpha \cdot L} \cdot \cos(\Delta k \cdot L)}{(\Delta k \cdot L)^2 + \left(\frac{1}{2}\Delta\alpha \cdot L \right)^2}, \quad (1)$$

式中 $\Delta k = k_1 - k_2 - k_3$, 为相位失配量, $\Delta\alpha = |\alpha_1 + \alpha_2 - \alpha_3|$, 为材料吸收系数差 (通常 $\alpha_1 + \alpha_2 < \alpha_3$); $k_i, \alpha_i, n_i, T_i, P_{\omega_i}$ ($i = 1, 2, 3$) 分别是相对应的差频波和 THz 波的波矢、在晶体中的吸收系数、折射率、透射率和峰值功率; 在晶体表面只抛光而未镀膜时, $T_i = 4n_i / (n_i + 1)^2$; r 是入射差频波的光斑半径; d_{eff} 是有效非线性系数, 与晶体结构和匹配方式有关, 当使用 oee 相位匹配时, $d_{\text{eff}} = d_{22} \cos^2 \theta \cos(3\varphi)$, θ 是相位匹配角, φ 是方位角 (为使 d_{eff} 最大, φ 常取 0°); L 是沿波矢方向晶体长度 (这里近似为沿光轴方向晶体长度), 我们称使得 P_{ω_3} 最大的 L 为最佳长度 (或称有效长度) L_f , 忽略走离效应.

我们将从理想情况到实际情况分 4 种情况进行

讨论.

2.1. $\Delta k = 0, \Delta\alpha = 0$ ($\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha_3 = 0$)

此时为完全相位匹配、无晶体吸收的理想情况, (1) 式变为

$$P_{\omega_3} = \frac{1}{2} \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \right)^{\frac{1}{2}} \frac{4\pi^2 (2d_{\text{eff}})^2}{n_1 n_2 n_3 \lambda_3^2} \left(\frac{P_{\omega_1} P_{\omega_2}}{\pi r^2} \right) T_1 T_2 T_3 \cdot L^2 = G \cdot L^2, \quad (2)$$

其中 $G = \frac{1}{2} \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \right)^{\frac{1}{2}} \frac{4\pi^2 (2d_{\text{eff}})^2}{n_1 n_2 n_3 \lambda_3^2} \left(\frac{P_{\omega_1} P_{\omega_2}}{\pi r^2} \right) T_1 T_2 T_3$, 对于固定 λ_3 和实验配置, G 为一定值, 以下若无说明 λ_3 取值变化, 都是对于固定 λ_3 值的分析结果.

P_{ω_3} 的值随 L 的平方成正比, 当 L 增加, P_{ω_3} 迅速增大, $L_f \rightarrow \infty$, 表明当理想情况时, 晶体长度越长越好.

2.2. $\Delta k = 0, \Delta\alpha \neq 0$

此时为完全相位匹配、晶体有吸收的情况, 则 (1) 式变为

$$P_{\omega_3} = \frac{1}{2} \left(\frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \right)^{\frac{1}{2}} \frac{4\pi^2 (2d_{\text{eff}})^2}{n_1 n_2 n_3 \lambda_3^2} \left(\frac{P_{\omega_1} P_{\omega_2}}{\pi r^2} \right) T_1 T_2 T_3 \times L^2 \cdot e^{-\alpha_3 L} \cdot \frac{1 + e^{-\Delta\alpha \cdot L} - 2e^{-\frac{1}{2}\Delta\alpha \cdot L}}{\left(\frac{1}{2}\Delta\alpha \cdot L \right)^2} = G \cdot e^{-\alpha_3 L} \cdot 4 \frac{(1 - e^{-\frac{1}{2}\Delta\alpha L})^2}{\Delta\alpha^2}. \quad (3)$$

对 (3) 式求偏导并令其等于零, 即 $\frac{\partial P_{\omega_3}}{\partial L} = 0$ 得出

$(\Delta\alpha + \alpha_3) \cdot e^{-\frac{1}{2}\Delta\alpha L} - \alpha_3 = 0$, 可得极值点,

$$L_f = L = -\frac{2}{\Delta\alpha} \ln \frac{\alpha_3}{\Delta\alpha + \alpha_3}, \quad (4)$$

将 (4) 式代入 (3) 式, 可得 P_{ω_3} 极大值

$$P_{\omega_3 \text{max}} = G \cdot \left(\frac{\alpha_3}{\Delta\alpha + \alpha_3} \right)^{\frac{2\alpha_3}{\Delta\alpha}} \cdot \frac{4}{(\Delta\alpha + \alpha_3)^2}. \quad (5)$$

对于 GaSe 材料, 波长在 $1 \mu\text{m}$ 左右的吸收系数取 $\alpha_1, \alpha_2 = 0.1 \text{ cm}^{-1}$ ^[20], 而 α_3 在 $0.5\text{—}6 \text{ THz}$ 之间随晶体质量变化而差别较大, 不同公司生产的 GaSe 晶体之间的吸收系数也相差明显, 从 0.1 至 35 cm^{-1} 左右, 所得到的实验结果也相差很大^[5, 7, 8]. 这里取 $\alpha_3 = 1\text{—}30 \text{ cm}^{-1}$ 计算, 根据 (4), (5) 式得到 $L_f, P_{\omega_3 \text{max}}$ 与 α_3 的关系见图 2, 3. 图 4 是当 $\alpha_3 = 2, 4, 6, 8, 10, 15, 20, 30 \text{ cm}^{-1}$ 时的 P_{ω_3} 与 L 在不同 α_3 时的关系图,

表 1 是具体的 L_f 和 $P_{\omega_3 \max}$ 值.

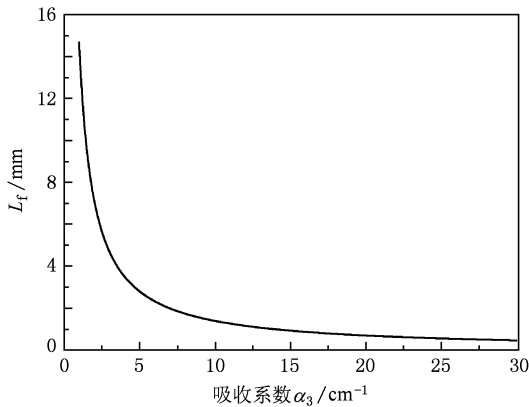


图 2 最佳长度 L_f 与吸收系数 α_3 关系图 ($\Delta k = 0$)

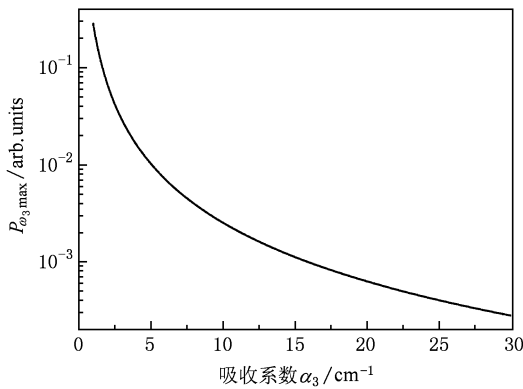


图 3 $P_{\omega_3 \max}$ 与吸收系数 α_3 关系图 ($\Delta k = 0$)

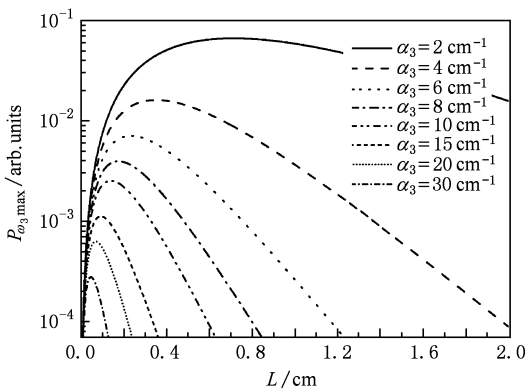


图 4 P_{ω_3} 与 L 在不同 α_3 时的关系图 ($\alpha_3 = 2, 4, 6, 8, 10, 15, 20, 30 \text{ cm}^{-1}$)

结合图 2—4 可以看出,随着 α_3 的增大, L_f 减小,同时 $P_{\omega_3 \max}$ 也迅速减小, α_3 从 2 到 20 cm^{-1} , L_f 减小了 10 倍, $P_{\omega_3 \max}$ 减小了 100 倍;当 $L < L_f$ 时, P_{ω_3} 随

着 L 的增大而迅速增大,但当 $L > L_f$ 时, P_{ω_3} 开始减小,且 α_3 越大, P_{ω_3} 随 L 增大减小的越快.

表 1 不同 α_3 值时的 L_f 和 $P_{\omega_3 \max}$ 值

$\alpha_3 / \text{cm}^{-1}$	2	4	6	8	10	15	20	30
L_f / cm	0.713	0.352	0.233	0.174	0.140	0.093	0.070	0.046
$P_{\omega_3 \max} / \text{arb. units}$	66.5	16.11	7.09	3.97	2.53	1.12	0.629	0.279

由图 4,当 $\alpha_3 = 6 \text{ cm}^{-1}$ 时, $L = L_f = 0.233 \text{ cm}$ 对应的 $P_{\omega_3} = 7.09 \times 10^{-3} \text{ arb. units}$,当 $L = 0.05 \text{ cm}$ 时 $P_{\omega_3} = 1.60 \times 10^{-3} \text{ arb. units}$,而当 $L = 0.8 \text{ cm}$ 时 P_{ω_3} 只有 $0.796 \times 10^{-3} \text{ arb. units}$,比 $L = 0.233 \text{ cm}$ 时的要小 1 个数量级,且比 $L = 0.05 \text{ cm}$ 时的结果还要小,可见此时更长的 L 所产生的增益已完全被材料吸收所抵消,更长的晶体并不一定产生更大的 THz 功率,这与文献[8]报道的实验结果相符合(当 $\alpha_3 = 6.5 \text{ cm}^{-1}$ 时的计算结果与参考文献[8]的图 6 图形相当符合).

从图 4 可以看出,当 $\Delta k = 0, \Delta \alpha \neq 0$ 时,影响 P_{ω_3} 值的最主要因素是 α_3 , α_3 决定 L_f 和 $P_{\omega_3 \max}$,同时也决定了当晶体长度 L 偏离 L_f 值 ΔL 时所对应的 P_{ω_3} 功率下降程度,所以在实验前,要详细测定材料的吸收系数,选用结晶质量更好吸收系数更小的晶体,同时将晶体长度 L 确定在相对应的 L_f 附近,从而获得最佳的 P_{ω_3} 值.

2.3. $\Delta k \neq 0, \Delta \alpha = 0 (\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha_3 = 0)$

此时为有相位失配、无晶体吸收的情况,则(1)式变为

$$\begin{aligned}
 P_{\omega_3} &= \frac{1}{2} \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^{\frac{1}{2}} \frac{4\pi^2 (2d_{\text{eff}})^2}{n_1 n_2 n_3 \lambda_3^2} \left(\frac{P_{\omega_1} P_{\omega_2}}{\pi r^2} \right) T_1 T_2 T_3 \\
 &\times L^2 \cdot \frac{2 - 2 \cdot \cos(\Delta k \cdot L)}{(\Delta k \cdot L)^2} \\
 &= G \cdot \frac{\sin^2\left(\frac{1}{2} \Delta k \cdot L\right)}{\left(\frac{1}{2} \Delta k\right)^2}, \quad (6)
 \end{aligned}$$

式中 $\sin^2\left(\frac{1}{2} \Delta k \cdot L\right)$ 是一个周期为 π 的函数,当 $\frac{\Delta k \cdot L}{2}$

$$= \frac{1}{2} \pi + n\pi (n \in Z), \text{ 即 } L = \frac{\pi(2n+1)}{\Delta k} (n \in Z) = \frac{\pi}{\Delta k},$$

$\frac{3\pi}{\Delta k}, \frac{5\pi}{\Delta k}, \frac{7\pi}{\Delta k}, \dots$ 时函数有最大值,当 $L = L_c = \frac{\pi}{\Delta k}$ 时,即可使得 P_{ω_3} 最大,之后更长的 L 并不能增大功率, L_c

称为相干长度,此时 $L_f = L_c$. 将 $L_c = \frac{\pi}{\Delta k}$ 代入(6)式可得: $P_{\omega_3} = G \cdot \frac{4}{\Delta k^2}$,即在晶体无吸收情况时, P_{ω_3} 与 Δk 的平方成反比,这样显然 Δk 越小越好,但实验时由于操作精度、温度影响、激光波长漂移等因素造成 $\Delta k \neq 0$,所以需要估计一下 Δk 的大小范围,本文分析因与完全相位匹配角 θ_{pm} ($\Delta k = 0$ 时的 θ) 产生偏差 $\Delta\theta$ 所造成的 Δk 变化的影响.

由动量守恒 $\mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3$ 以及 oee 共线相位匹配方式,可得

$$\frac{1}{\lambda_1} n_o(\lambda_1) = \frac{1}{\lambda_2} \left[\frac{\sin^2 \theta}{n_e^2(\lambda_2)} + \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2(\lambda_2)} \right]^{-\frac{1}{2}} + \frac{1}{\lambda_3} \left[\frac{\sin^2 \theta}{n_e^2(\lambda_3)} + \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2(\lambda_3)} \right]^{-\frac{1}{2}}. \quad (7)$$

结合 GaSe 在 0.65—18 μm 之间的色散方程^[21]:

$$\begin{aligned} n_o^2(\lambda) &= 7.443 + \frac{0.4050}{\lambda^2} + \frac{0.0168}{\lambda^4} + \frac{0.0061}{\lambda^6} \\ &\quad + \frac{3.1485\lambda^2}{\lambda^2 - 2194}, \\ n_e^2(\lambda) &= 5.760 + \frac{0.3879}{\lambda^2} - \frac{0.2288}{\lambda^4} + \frac{0.1223}{\lambda^6} \\ &\quad + \frac{1.855\lambda^2}{\lambda^2 - 1780}. \end{aligned} \quad (8)$$

将 $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$ 值代入(7)式,可得到相位匹配角 $\theta = \theta_{pm}$; 又根据定义

$$\begin{aligned} \Delta k(\theta) &= k_1 - k_2 - k_3 = 2\pi \left(\frac{n_1}{\lambda_1} - \frac{n_2}{\lambda_2} - \frac{n_3}{\lambda_3} \right) \\ &= 2\pi \left(\frac{n_o(\lambda_1)}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} \left[\frac{\sin^2 \theta}{n_e^2(\lambda_2)} + \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2(\lambda_2)} \right]^{-\frac{1}{2}} \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{\lambda_3} \left[\frac{\sin^2 \theta}{n_e^2(\lambda_3)} + \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2(\lambda_3)} \right]^{-\frac{1}{2}} \right), \end{aligned}$$

对 $\Delta k(\theta)$ 进行泰勒展开,取一级近似

$$\Delta k(\theta) \approx \Delta k(\theta_{pm}) + \left. \frac{\partial \Delta k(\theta)}{\partial \theta} \right|_{\theta=\theta_{pm}} \cdot (\theta - \theta_{pm}),$$

而 $\Delta k(\theta_{pm}) = 0$, 所以可得

$$\Delta k(\theta) \approx \left. \frac{\partial \Delta k(\theta)}{\partial \theta} \right|_{\theta=\theta_{pm}} \cdot (\theta - \theta_{pm}) = \rho \cdot \Delta\theta, \quad (9)$$

(9)式中 ρ 为角度失配系数

$$\rho = \left. \frac{\partial \Delta k(\theta)}{\partial \theta} \right|_{\theta=\theta_{pm}} = \pi \left(\frac{1}{\lambda_2} \left[\frac{\sin^2 \theta}{n_e^2(\lambda_2)} + \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2(\lambda_2)} \right]^{-\frac{3}{2}} \right.$$

$$\begin{aligned} &\times 2 \sin \theta \cos \theta \left(\frac{1}{n_e^2(\lambda_2)} - \frac{1}{n_o^2(\lambda_2)} \right) \\ &+ \frac{1}{\lambda_3} \left[\frac{\sin^2 \theta}{n_e^2(\lambda_3)} + \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2(\lambda_3)} \right]^{-\frac{3}{2}} \\ &\times 2 \sin \theta \cos \theta \left(\frac{1}{n_e^2(\lambda_3)} - \frac{1}{n_o^2(\lambda_3)} \right) \Big|_{\theta=\theta_{pm}}, \end{aligned} \quad (10)$$

$\Delta\theta = \theta - \theta_{pm}$ 为角度失配量,

则由 $P_{\omega_3} = G \cdot \frac{4}{\Delta k^2}$ 可得到

$$P_{\omega_3} = G \cdot \frac{4}{\rho^2 \Delta\theta^2}. \quad (11)$$

取 $\lambda_3 = 600-60 \mu\text{m}$, 结合(7)–(9)式,得到相应的 λ_2 和 θ_{pm} 值,代入(10)式,得到相应的 ρ 值,结果如图5所示,图6是相位匹配角 θ_{pm} 与 λ_3 的关系图,其中几个常用点 $\lambda_3 = 600, 300, 150, 100, 75, 60 \mu\text{m}$ 处的结果如表2所示.

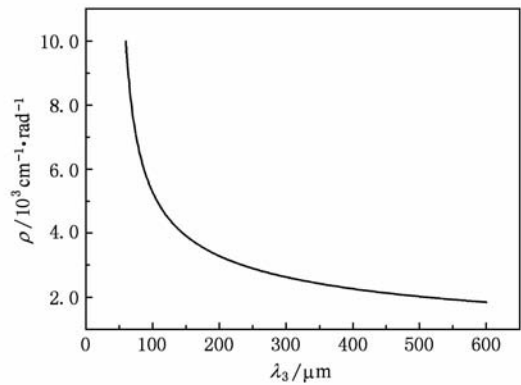


图5 角度失配系数 ρ 与 THz 波长 λ_3 的关系图

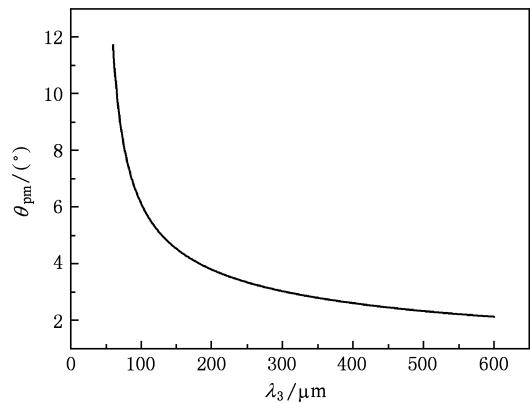


图6 相位匹配角 θ_{pm} 与 THz 波长 λ_3 的关系图

从图5可见,角度失配系数 ρ 很大,则由(9)式可知 Δk 对 $\Delta\theta$ 非常敏感,如当 $\lambda_3 = 300 \mu\text{m}$ 时, $\rho =$

2631.8 cm⁻¹ · rad⁻¹, Δθ = 0.1° 对应的 Δk ≈ 4.6 cm⁻¹, 且随着 λ₃ 的减小, ρ 也迅速增大, 在 λ₃ = 60 μm 时, ρ = 9991.0 cm⁻¹ · rad⁻¹, 加大了在短波段的精度要求. 根据(11)式, P_{ω₃} 是与 Δθ 的平方成反比的, Δθ = 1° 时的 P_{ω₃} 减小到 Δθ = 0.1° 时的 1/100, 且 ρ 更加放大了 Δθ 对 P_{ω₃} 的影响, 这样对于 Δθ 的调节精度要求相当高. 对于确定的晶体和波长范围, ρ 值是常数, 所以在实验时, 只能通过细微调整以及选择更好的角度调谐结构来减小 Δθ, 使得 θ 更接近 θ_{pm}, 从而减小 Δk 来提高 P_{ω₃}.

表2 λ₃ = 600, 300, 150, 100, 75, 60 μm 时的 ρ 与 θ_{pm} 值

λ ₁ /μm	λ ₃ /μm	f ₃ /THz	λ ₂ /μm	θ _{pm} /(°)	ρ/cm ⁻¹ · rad ⁻¹
	600	0.5	1.0660	2.1326	1850.6
	300	1	1.0679	3.0352	2631.8
1.06415	150	2	1.0718	4.5304	3920.9
	100	3	1.0756	6.1256	5287.2
	75	4	1.0795	8.2440	7084.0
	60	5	1.0834	11.7232	9991.0

2.4. Δk ≠ 0, Δα ≠ 0

此时为有相位失配、晶体有吸收的实际情况, 则(1)式不变化

$$P_{\omega_3} = G \cdot e^{-\alpha_3 L} \cdot \frac{1 + e^{-\Delta\alpha \cdot L} - 2e^{-\frac{1}{2}\Delta\alpha \cdot L} \cdot \cos(\Delta k \cdot L)}{(\Delta k)^2 + \left(\frac{1}{2}\Delta\alpha\right)^2} \quad (12)$$

对(12)式求偏导并令其等于零, 即 $\frac{\partial P_{\omega_3}}{\partial L} = 0 \Rightarrow$

$$2e^{-\frac{1}{2}\Delta\alpha L} \left[\left(\alpha_3 + \frac{1}{2}\Delta\alpha \right) \cdot \cos(\Delta k \cdot L) + \Delta k \times \sin(\Delta k \cdot L) - \frac{1}{2}(\alpha_3 + \Delta\alpha) \cdot e^{-\frac{1}{2}\Delta\alpha L} \right] = \alpha_3, \quad (13)$$

代入 α₃ 和 Δk 的值, 使用二分法解(13)式中对应区间内 L ≠ 0 的解, 即为 L_f.

利用 2.3 节结论, 假设实验中可以调整到 Δθ ≈ 0.1°, 则当 λ₃ = 60—600 μm 时, 对应的 Δk 在 3.2—17.5 cm⁻¹ 范围内, 所以这里令 Δk = 3, 6, 9, 12, 15, 18 cm⁻¹ 取值变化, 而取 α₁ = α₂ = 0.1 cm⁻¹, α₃ = 1—30 cm⁻¹, 根据(12), (13)式计算在 α₃, Δk 不同取值下对应的 L_f 和 P_{ω₃max} 值, 结果见图 7, 8. 而对于 Δk ≤ 2 cm⁻¹ 的可能情况, 我们也计算了相应的 L_f 和

P_{ω₃max} 值, 如表 3 所示.

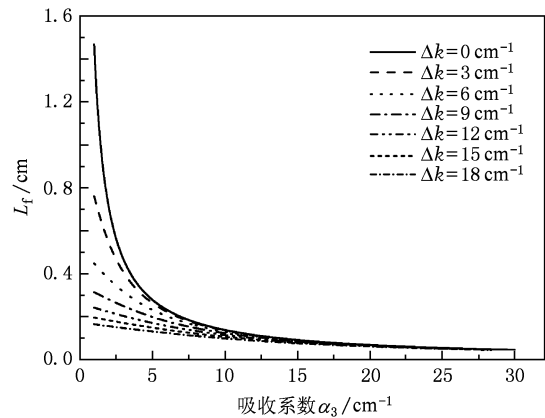


图7 最佳长度 L_f 与吸收系数 α₃ 在不同 Δk 下的关系图

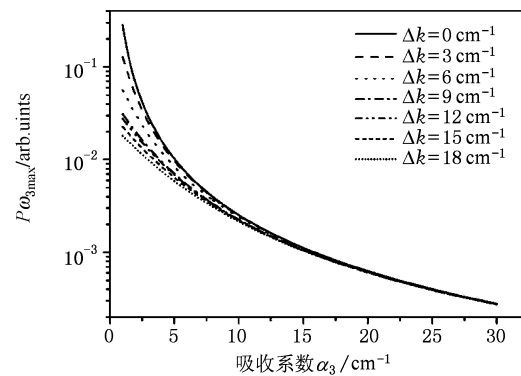


图8 P_{ω₃max} 与吸收系数 α₃ 在不同 Δk 下的关系图

表3 Δk ≤ 2 cm⁻¹ 时对应的 L_f 和 P_{ω₃max} 值

α ₃ / cm ⁻¹	Δk = 0.5 cm ⁻¹		Δk = 1 cm ⁻¹		Δk = 2 cm ⁻¹	
	L _f / cm	P _{ω₃max} / 10 ⁻³ arb. aunits	L _f / cm	P _{ω₃max} / 10 ⁻³ arb. aunits	L _f / cm	P _{ω₃max} / 10 ⁻³ arb. aunits
0.5	2.658	1096.9	2.005	779.1	1.261	401.3
1	1.409	272.2	1.268	243.4	0.973	177.7
2	0.706	65.9	0.685	63.9	0.620	57.5
4	0.350	16.08	0.348	16.0	0.338	15.5
6	0.233	7.081	0.232	7.058	0.229	6.966
8	0.174	3.964	0.174	3.957	0.172	3.928
10	0.140	2.53	0.140	2.527	0.138	2.515
15	0.092	1.12	0.092	1.119	0.092	1.117
20	0.070	0.629	0.070	0.629	0.070	0.628

从图 7, 8 中可以看出, 当 α₃ 较小时, Δk 对于 L_f 和 P_{ω₃max} 的衰减影响非常明显: 对于 α₃ = 2 cm⁻¹ 情况, L_f 和 P_{ω₃max} 从 Δk = 0 cm⁻¹ 时的 0.714 cm 和

0.0665 arb. units 迅速下降到 $\Delta k = 3 \text{ cm}^{-1}$ 时的 0.546 cm 和 0.0498 arb. units, 降低了 25% 左右; 当 $\Delta k = 6 \text{ cm}^{-1}$ 时, L_r 和 $P_{\omega_{3\max}}$ 更是只有 0.377 cm 和 0.0309 arb. units, 降低了约 50%. 而随着 α_3 的增大, Δk 的影响所占比重逐渐减小: 对于 $\alpha_3 = 15 \text{ cm}^{-1}$ 情况, L_r 和 $P_{\omega_{3\max}}$ 从 $\Delta k = 0 \text{ cm}^{-1}$ 到 $\Delta k = 6 \text{ cm}^{-1}$ 只降低了 5% 左右, 尤其当 $\alpha_3 = 30 \text{ cm}^{-1}$ 时, Δk 对 L_r 和 $P_{\omega_{3\max}}$ 的影响基本可以忽略. 从表 3 可以看出, 吸收使得 $L_r < L_c$, 在 α_3 和 Δk 均较小时 ($\leq 2 \text{ cm}^{-1}$), L_r 和 $P_{\omega_{3\max}}$ 都是相对较高的, 所以实验重点之一是如何降低 α_3 和 Δk . 对于降低 GaSe 晶体在 THz 波段的吸收系数 α_3 , 可选用结晶质量更好的 GaSe, 有文献表明低载流子浓度的 GaSe 可产生更强的 THz 功率^[22], 对于降低 Δk , 可用增加光路校准元件、双光路监测、增加温控系统等方法来降低角度和温度等的偏移来实现. 最后根据 α_3 和 Δk 选择恰当的晶体长度, 可有效地得到更高功率的 THz 波.

综上所述, 我们可依照以下步骤进行非线性光学差频实验:

1) 用 THz 时域光谱系统或者 THz 傅里叶光谱

仪确定晶体在 THz 波段的吸收系数, 尽量选用吸收系数小的晶体;

2) 估算实验操作可能造成的相位失配, 采用高精度的角度调谐装置来降低角度失配量;

3) 根据吸收系数和相位失配进行公式计算来确定最佳的晶体长度, 从而获得尽可能大的 THz 波功率.

3. 结 论

本文从理论上分析了相位失配与材料吸收在利用 GaSe 差频产生 THz 波中的影响, 计算得到了 4 种不同情况下的晶体最佳长度值和相应的 THz 最大功率, 计算了角度失配对于相位失配的影响. 计算结果表明, 材料吸收限定了晶体的最佳长度, 更长的晶体并不一定产生更大的 THz 功率, 相位失配对入射角度非常灵敏, 进一步降低了 THz 功率, 降低相位失配与材料吸收将是实验的重点内容之一. 研究结果为利用 GaSe 晶体差频产生 THz 波的实验提供了理论设计基础和实验参考依据.

- [1] Pickett H M 1999 *Terahertz Spectroscopy and Appl.* **3617** 2
- [2] O'Shea P G, Freund H P 2001 *Science* **292** 1853 1
- [3] Wu L, Zhang X C, Auston D H 1992 *Appl. Phys. Lett.* **61** 1784
- [4] Siegel P H 2004 *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.* **52** 2438
- [5] Shi W, Ding Y J, Ferneliuss N, Vodopyanov K 2002 *Opt. Lett.* **27** 1454
- [6] Shi W, Ding Y J 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 1635
- [7] Tanabe T, Suto K, Nishizawa J, Sasaki T 2004 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **37** 155
- [8] Zhang D W, Lü Z H, Sun L, Shao Z Z, Yuan J M 2008 *Proc. SPIE* **7277** 727710
- [9] Shi W, Ding Y J, Schunemann P G 2004 *Opt. Commun.* **233** 183
- [10] Guo R X, Akiyama K, Minamide H, Ito H 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 091120
- [11] Tanabe T, Suto K, Nishizawa J, Kimura T, Saito K 2003 *J. Appl. Phys.* **93** 4610
- [12] Tanabe T, Suto K, Nishizawa J, Saito K, Kimura T 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 237
- [13] Tochitsky S Y, Ralph J E, Sung C, Joshi C 2005 *J. Appl. Phys.* **98** 026101
- [14] Taniuchi T, Okada S, Nakanishi H 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 5984
- [15] Ding Y J, Shi W 2006 *Laser Phys.* **16** 562
- [16] 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]
- [17] 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]
- [18] Sun B, Liu J S, Li E B, Yao J Q 2009 *Chin. Phys. B* **18** 2846
- [19] Aggarwal R L, Lax B 1977 *Nonlinear Infrared Generation* (Edited by Shen Y R) (New York: Academic) p28
- [20] Dmitriev V G, Gurzadyan G G, Nikogosyan D N 1999 *Handbook of Nonlinear Optical Crystals* (Berlin: Springer) pp166—169
- [21] Vodopyanov K L, Kulevskii L A 1995 *Opt. Commun.* **118** 375
- [22] Kenmochi A, Tanabe T, Oyama Y, Suto K, Nishizawa J I 2008 *J. Phys. Chem. Solids* **69** 605

Analysis of the effect of phase-mismatch and material absorption on the terahertz-wave generation from GaSe^{*}

Lu Jin-Xing Huang Zhi-Ming[†] Huang Jing-Guo Wang Bing-Bing Shen Xue-Min

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

(Received 20 April 2010; revised manuscript received 8 May 2010)

Abstract

We analyzed the effect of phase-mismatch and material absorption on the terahertz-wave difference-frequency generation from GaSe theoretically. We calculated the best length of crystal and the corresponding terahertz power under four different conditions and the effect of angle-mismatch on phase-mismatch. The result provided a theoretical basis and reference to nonlinear optical difference-frequency experiments.

Keywords: terahertz wave, GaSe crystal, phase-mismatch, material absorption

PACS: 42.65.-k, 42.65.Ky

^{*} Project supported by the Major Program for the Research Equipment of the Chinese Academy of Sciences, China (Grant No. YZ200835) and the Shanghai Foundation for Leaders of Disciplines in Science, China (Grant No. 10XD1404800).

[†] Corresponding author. E-mail: zmhuang@mail.sitp.ac.cn