

## CO<sub>2</sub> 激光差频 GaSe 晶体产生太赫兹波的数值计算

姜 可<sup>1,2</sup>, 谢冀江<sup>1</sup>, 张来明<sup>1</sup>, 骆 聪<sup>1,2</sup>

(1. 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所 激光与物质相互作用国家重点实验室, 吉林 长春 130033; 2. 中国科学院大学, 北京 100049)

**摘 要:** 以可调谐 CO<sub>2</sub> 激光差频非线性 GaSe 晶体为例, 在共线相位匹配方式下, 计算了 oe-e 和 oe-o 两种相位匹配方式下的角度调谐特性、有效非线性系数、走离角和允许角。结果表明: GaSe 晶体可产生 73.84~3 000 μm 的太赫兹波, 且有效非线性系数为 41~54 pm/V; 走离角在 1.771°~10.63°之间; 所允许的最大发散角为 13.95~94.7 μm·rad, 对入射光的方向性要求较高。对于 500 μm 以上的太赫兹波, 两种匹配方式除有效非线性系数外没有大的区别。模拟结果对于开展基于激光差频技术产生太赫兹的研究具有重要的指导意义。

**关键词:** 差频; 太赫兹; CO<sub>2</sub> 激光; GaSe 晶体; 相位匹配

中图分类号: O437.1 文献标志码: A 文章编号: 1007-2276(2013)05-1223-05

## Simulation on THz radiation via difference frequency mixing of CO<sub>2</sub> laser in GaSe crystal

Jiang Ke<sup>1,2</sup>, Xie Jijiang<sup>1</sup>, Zhang Laiming<sup>1</sup>, Luo Cong<sup>1,2</sup>

(1. State Key Laboratory of Laser Interaction with Matter, Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China; 2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

**Abstract:** The process that Q switched tunable CO<sub>2</sub> laser pumps nonlinear GaSe crystal was studied. Based on the collinear phase match type, the phase matching angle, effective nonlinear coefficient, walk-off angle and acceptant angle were calculated. The results are as follow: THz wave between 73.84 and 3 000 μm can be generated using DFG based on GaSe crystal which has high effective nonlinear coefficient of 41~54 pm/V. The walk off angle is big, which is between 1.771° and 10.63°. With the small acceptant angle 13.95~94.7 μm·rad, the requirement in directional property is strict. When the THz wavelength is above 500 μm, the two phase matching types, oe-e and oe-o, are very similar except the effective nonlinear coefficient. In experiments, it was up to the experiment conditions to decide which type to choose. The simulation result can guide the experiments about DFG in GaSe crystal.

**Key words:** DFG; THz; CO<sub>2</sub> laser; GaSe crystal; phase matching

收稿日期: 2013-02-11; 修订日期: 2013-03-13

基金项目: 激光与物质相互作用国家重点实验室开放基础研究课题(SKLLIM1012)

作者简介: 姜可(1988-), 女, 博士生, 主要从事非线性频率转换方面的研究。Email: jkwangyou@163.com

导师简介: 谢冀江(1959-), 男, 研究员, 主要从事高功率激光及其应用方面的研究。Email: laserxjj@163.com

## 0 引言

太赫兹辐射振荡频率为 0.1~10 THz, 位于微波和红外辐射的过渡区域, 在安全检查、医学成像、环境监测、食品检验、卫星通信和武器制导等领域均具有巨大的科学研究价值和广阔的应用前景<sup>[1-4]</sup>。目前, 利用相关晶体的非线性特性获得太赫兹波的方法以其没有阈值, 结构简单易实现, 并且可室温下连续、可调谐运转等优点, 成为得到太赫兹波的一种重要手段<sup>[5]</sup>。应用于激光差频产生太赫兹的无机晶体目前主要有 GaAs、GaSe、LiNbO<sub>3</sub>、AgGaSe<sub>2</sub> 和 ZnGeP<sub>2</sub> 等。其中, GaAs 只适用于特定的谱线, AgGaSe<sub>2</sub> 的非线性系数较低  $d_{22}=33 \text{ pm/V}$ , 而 ZnGeP<sub>2</sub> 和 PPLN 晶体需要复杂的前期设计和后期处理, PPLN 晶体的透过光谱范围在 0.4~5.5  $\mu\text{m}$  之间。只有 GaSe 晶体有天然解理面, 无需切割和抛光, 且在 0.62~18  $\mu\text{m}$  的吸收系数只有 0.1~0.05  $\text{cm}^{-1}$ , 在太赫兹波和毫米波段吸收系数最低, 同时具有较高的非线性系数和光损伤阈值, 十分适用于利用 CO<sub>2</sub> 激光差频产生太赫兹的研究, 成为获得太赫兹波最有前景的晶体之一。

自 1972 年 GaSe 晶体应用到中红外频率转换以来, GaSe 在产生太赫兹波方面的应用便一直受到人们的关注。1998 年 A. O. Okorogu<sup>[6]</sup> 等人利用 GaSe 中得到 3.5~8.5  $\mu\text{m}$  的差频输出, 其相位匹配角的实验数据和理论数据十分吻合。Wei Shi 和 Yujie J. Ding<sup>[7]</sup> 利用 CO<sub>2</sub> 激光差频 GaSe 晶体, 于 2007 年得到 328.2  $\mu\text{m}$  的太赫兹输出, 转换效率约为 0.004 6%。文中在准共线相位匹配基础上对 GaSe 晶体在太赫兹波段内的相位匹配方式、相位匹配角进行了计算, 同时计算了走离角及发散角与泵浦光和太赫兹波长的关系。

## 1 GaSe 晶体的相位匹配

非线性差频过程即为由已知频率为  $\omega_3$  和  $\omega_2$  的光电场产生频率为  $\omega_1=\omega_3-\omega_2$  的差频光电场的过程。由于光电场在晶体中的变化要满足动量守恒条件, 有:

$$\vec{\Delta k}=\vec{k}_3-\vec{k}_2-\vec{k}_1=0 \quad (1)$$

其中,  $k_i=\frac{2\pi}{\lambda_i}$ ,  $i=1, 2, 3$ 。

当采用共线相位匹配方式时, 公式(1)变为:

$$\Delta k=k_3-k_2-k_1=0 \quad (2)$$

将公式(2)继续推导可得到更加直观的式子:

$$\frac{n_3}{\lambda_3}-\frac{n_2}{\lambda_2}-\frac{n_1}{\lambda_1}=0 \quad (3)$$

式中:  $\lambda_1$ 、 $\lambda_2$  和  $\lambda_3$  为三波在真空中的波长;  $n_1$ 、 $n_2$  和  $n_3$  为三波在晶体中的折射率。各波长在 GaSe 晶体中的折射率可根据其 Sellmeier 方程<sup>[8]</sup>得到:

$$n_o^2=7.443+\frac{0.4050}{\lambda^2}+\frac{0.0186}{\lambda^4}+\frac{0.0061}{\lambda^6}+\frac{3.1485\lambda^2}{\lambda^2-2194} \quad (4)$$

$$n_e^2=5.760+\frac{0.3879}{\lambda^2}+\frac{0.2288}{\lambda^4}+\frac{0.1223}{\lambda^6}+\frac{1.855\lambda^2}{\lambda^2-1780} \quad (5)$$

GaSe 晶体的色散曲线如图 1 所示。

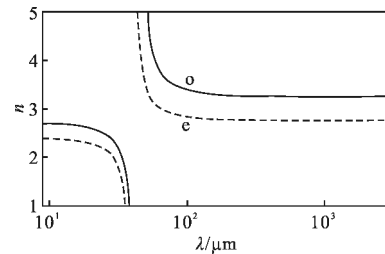


图 1 GaSe 晶体色散曲线

Fig.1 Dispersion curves of GaSe crystal

由于 CO<sub>2</sub> 激光的调谐范围正好处于 GaSe 晶体的透光范围内, 模拟可调谐 CO<sub>2</sub> 激光对其进行泵浦的情况, 选择波长最短的 9.3  $\mu\text{m}$  输出波长为泵浦光  $\lambda_3$ , 信号光  $\lambda_2$  从 9.32~10.64  $\mu\text{m}$  之间变化, 对 oe-e 和 oe-o 相位匹配方式下的相位匹配角  $\theta_m$  进行计算, 得到图 2。

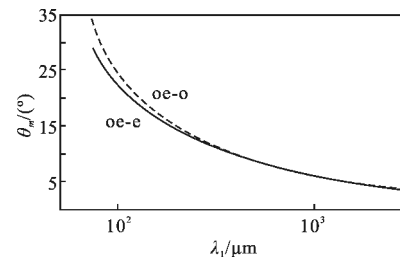


图 2 GaSe 晶体差频相位匹配调谐曲线

Fig.2 Phase matching angle and DFG tunable curves in GaSe crystal

由图 2 可以看出, oe-e 和 oe-o 两种相位匹配方式都能满足波长范围为 73.84~3 000  $\mu\text{m}$  的太赫兹输出。就整体趋势来看, GaSe 的相位匹配角随太赫兹波长  $\lambda_3$  的增加而逐渐减小, 且递减速率逐渐降低。oe-o 方式下的  $\theta_m$  要大于 oe-e 方式, 但随  $\lambda_1$  的

增加,差距减小。 $\lambda_1$  在 73.84~500  $\mu\text{m}$  时,采用 oe-e 的调谐范围为 29.13°~8.962°,采用 oe-o 的调谐范围为 34.21°~8.962°。之后两种方式的调谐曲线重合, $\lambda_1$  在 500~3 000  $\mu\text{m}$  时,调谐角度范围为 8.962°~3.137°。可以看出,GaSe 晶体在  $\lambda_1$  大于 500  $\mu\text{m}$  波段的角度调谐范围很小,在具体实验中要精确调节相位匹配角。

由于 GaSe 晶体的天然解理面(001)有较高的光学质量,可以作为输入输出面,因此大部分情况下,GaSe 晶体的切割是垂直于光轴方向的,也称 z 切割。但是 z 切割情况下,由于要满足 Snell 定律  $n_1 \sin \varphi_1 = n_2 \sin \varphi_2$ ,经计算,oe-e 和 oe-o 方式下,太赫兹波长分别在 73.84~99.77  $\mu\text{m}$  和 73.84~102.9  $\mu\text{m}$  之间的相位匹配角不能实现。为解决这一问题,目前有两种方法:将 GaSe 放置在某种介质中来减小晶体内外的折射率差以实现相位匹配<sup>[9]</sup>;或在 GaSe 中掺杂其他等价元素的方法来提高 GaSe 晶体的机械性能,使其可以沿任意方向切割以实现相位匹配。

根据菲涅耳透射率和反射率公式,折射角越大,反射损耗越小,因此采用 oe-e 方式的反射损耗要小一些。

## 2 有效非线性系数

oe-e 和 oe-o 方式都能产生太赫兹辐射,但是选用哪一种方式进行相位匹配还需要考虑有效非线性系数  $d_{\text{eff}}$ 、走离角  $\alpha$  和允许角  $\delta$  等因素。首先模拟计算  $d_{\text{eff}}$  与信号光波长和太赫兹波长的关系,如图 3 所示。

在 GaSe 晶体的两种相位匹配方式中, $d_{\text{eff}}$  分别为<sup>[10]</sup>:

$$\text{oe-e } d_{\text{eff}} = d_{22} \cos^2 \theta_m \cos 3\phi \quad (6)$$

$$\text{oe-o } d_{\text{eff}} = d_{22} \cos \theta_m \sin 3\phi \quad (7)$$

式中: $\theta_m$  为相位匹配角; $\phi$  为入射光的方位角即波矢  $\vec{k}$  在晶体 xy 面上的投影与 x 轴之间的夹角,非线性系数  $d_{22} = 54 \text{ pm/V}$ 。由于方位角  $\phi$  可以人为控制,排除  $\phi$  的影响因素之后得到图 3。

从图 3 可知,GaSe 晶体在 CO<sub>2</sub> 激光的泵浦下的有效非线性系数  $d_{\text{eff}}$  随太赫兹波长  $\lambda_1$  的增加而增加,相应的随  $\lambda_2$  的增加而减小,变化范围为 41.93~54  $\text{pm/V}$ 。在任何波长下,oe-o 匹配方式下的有效非线性系数

$d_{\text{eff}}$  都高于 oe-e 匹配方式。随着  $\lambda_1$  的增加或  $\lambda_2$  的减小,两者之间的差距在不断减小,在  $\lambda_1 = 3\ 000 \mu\text{m}$ ,  $\lambda_2 = 9.329 \mu\text{m}$  时,oe-o 方式和 oe-e 方式下的  $d_{\text{eff}}$  近乎重合,分别为 53.39  $\mu\text{m}$  和 53.29  $\mu\text{m}$ 。由此可知,利用 CO<sub>2</sub> 激光泵浦 GaSe 晶体时,采用 oe-o 相位匹配方式可以得到较大的有效非线性系数  $d_{\text{eff}}$ ,且太赫兹波长越长, $d_{\text{eff}}$  越大。

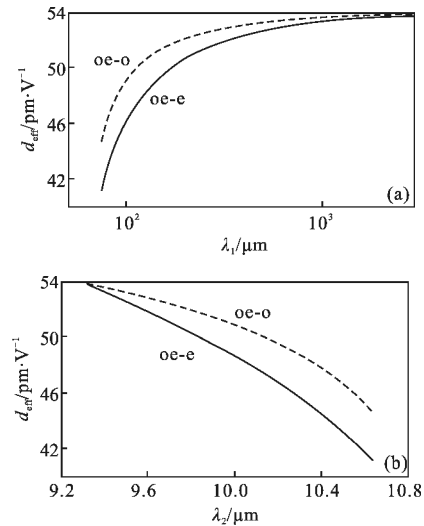


图 3 GaSe 晶体中有效非线性系数与太赫兹波长及信号光波长的关系

Fig.3 Relationship between effective nonlinear coefficient and single light wavelength and THz wavelength

## 3 走离角

当通过调整光的传播方向实现相位匹配时,由于晶体的双折射作用,e 光的波法线方向和光线方向不一致,这就造成了不同偏振态的入射光  $\lambda_2$  和  $\lambda_3$  在能量传播方向上的分离,从而使转换效率下降,当它们完全分离时,便不能产生太赫兹波  $\lambda_1$ 。当光斑直径同样的光入射晶体时,走离角  $\alpha$  越小,光在晶体内部的有效作用距离越大,转换效率越大。因此走离效应也是影响差频转换效率的因素之一。

根据非线性晶体光学理论<sup>[11]</sup>,有:

$$\tan \alpha = \frac{1}{2} \sin 2\theta \left( \frac{1}{n_o^2} - \frac{1}{n_e^2} \right) \left( \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} \right)^{-1} \quad (8)$$

式中: $\theta = \theta_m$ 。根据之前计算的相位匹配角  $\theta_m$  计算  $\alpha$ ,得到图 4。

可以看出在 GaSe 晶体中, $\alpha$  随信号光  $\lambda_2$  的增加,从 1.771° 逐渐增加到 10.63°,这要比大多数晶体

的走离角大一些<sup>[12]</sup>,主要是因为 GaSe 晶体的双折射率较大,在 0.35~0.5 之间。 $\lambda_2$  小于 9.47  $\mu\text{m}$  即  $\lambda_1$  大于 500  $\mu\text{m}$  时,oe-e 和 oe-o 的走离角曲线重合,之后 oe-e 的  $\alpha$  要低于 oe-o 方式,随着  $\lambda_2$  的增大,两种方式的走离角差距先增大后减小,在  $\lambda_2=10.64 \mu\text{m}$  处,两者差距最小,几乎为 0。整体上可认为 oe-e 的走离角要比 oe-o 的小。由于走离角的存在,光束的光斑直径直接决定了晶体的有效长度  $L$ , $L=a/\tan\alpha$ 。当光斑直径为  $a=1 \text{ mm}$ ,走离角为  $\alpha=5^\circ$  时,晶体的有效长度  $L=11.4286 \text{ mm}$ ,超出这个长度,泵浦光与信号光完全分离,便不能产生太赫兹波。

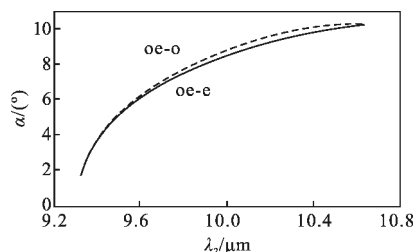


图 4 GaSe 晶体中走离角与信号光波长的关系

Fig.4 Relationship between walk off angle and single light wavelength in GaSe crystal

## 4 允许角

实际操作中,所有的光束都不是假设的理想均匀的平面波,都存在一定的发散角。将有发散角的入射波分解成有不同方向波矢的平面光波的叠加,不同方向的平面波不会在同一相位匹配角达到相位匹配。

非线性光学中用  $\Delta\mathbf{k}$  表示相位失配参数<sup>[13]</sup>,定义最大失配量为  $\pi/2$ ,对应最大  $\Delta\mathbf{k}=\pi/L$ 。根据相位匹配理论, $\Delta\mathbf{k}$  为波矢  $\mathbf{K}$  与光轴夹角  $\theta$  的函数,且  $\theta=\theta_m$  时, $\Delta\mathbf{k}=0$ 。将  $\Delta\mathbf{k}$  在  $\theta=\theta_m$  处进行泰勒展开,并取一级近似,得到下面的式子: $\Delta\mathbf{k}=\frac{d\Delta\mathbf{k}}{d\theta}|_{\theta=\theta_m}\Delta\theta$ ,

进而得出:

$$\Delta\theta=\Delta\mathbf{k}/\left(\frac{d\Delta\mathbf{k}}{d\theta}\Big|_{\theta=\theta_m}\right) \quad (9)$$

将最大允许  $\Delta\mathbf{k}=\pi/L$  代入上式,得到:

$$L\Delta\theta=\pi/\left(\frac{d\Delta\mathbf{k}}{d\theta}\Big|_{\theta=\theta_m}\right) \quad (10)$$

$L\Delta\theta$  即为允许的入射波最大发散角,记为允许角  $\delta$ ,其中  $L$  的单位为  $\mu\text{m}$ 。可见,晶体长度  $L$  越长,对入射角的方向性要求越高。

由图 5 可以看出,随着太赫兹波长  $\lambda_1$  的增大,晶体的允许角也在增大,对于 GaSe 晶体, $\delta$  在 13.95 到 94.7  $\mu\text{m}\cdot\text{rad}$  之间。oe-e 和 oe-o 两种匹配方式下  $\delta$  的差别并不显著,oe-e 匹配方式下的  $\delta$  要比 oe-o 匹配方式小一些,但随  $\lambda_1$  的增大,差距缩小, $\lambda_1$  大于 1000  $\mu\text{m}$  时,两种方式下  $\delta$  的曲线重合。若晶体长度为 5 mm,产生太赫兹波长  $\lambda_1$  为 297.6  $\mu\text{m}$  时,oe-e 和 oe-o 的允许角分别为 20.70' 和 21.27',因此在具体实验中要对入射光束进行精确准直。

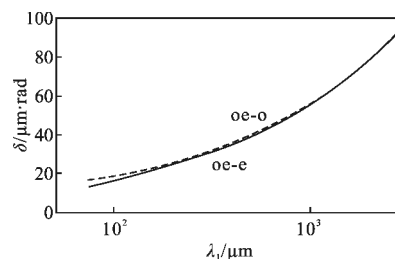


图 5 GaSe 晶体中允许角与太赫兹波长的关系

Fig.5 Relationship between acceptant angle and THz wavelength in GaSe crystal

## 5 结论

文中基于共线相位匹配理论,对可调谐  $\text{CO}_2$  激光差频 GaSe 晶体产生太赫兹波过程中的相位匹配角  $\theta_m$ 、有效非线性系数  $d_{\text{eff}}$ 、走离角  $\alpha$  和允许角  $\delta$  等进行了系统的计算,并对结果进行分析:(1) 在 oe-e 和 oe-o 两种相位匹配方式下,GaSe 晶体在波长范围为 75.83~3000  $\mu\text{m}$  的太赫兹范围内都能实现相位匹配,进行角度调谐,但在 500~3000  $\mu\text{m}$  的太赫兹波段内调谐性能较差;(2) GaSe 晶体的有效非线性系数  $d_{\text{eff}}$  较大,容易实现太赫兹输出,但走离角和允许角不是很理想;(3) 在太赫兹波长小于 500  $\mu\text{m}$  时,oe-o 相位匹配方式在调谐特性、有效非线性系数  $d_{\text{eff}}$  和允许角方面较好,oe-e 在走离角方面较好;太赫兹波长大于 500  $\mu\text{m}$  的波段,两种方式相差不大。

## 参考文献:

- [1] Liu Shenggang. New development of THz technology [J]. China Basic Sciences, 2006: 7-12. (in Chinese)  
刘盛纲. 太赫兹科学技术的新发展 [J]. 中国基础科学, 2006: 7-12.
- [2] Guo Lantao, Mu Kaijun, Deng Chao, et al. Terahertz

- spectroscopy and imaging[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2013, 42(1): 51-56. (in Chinese)  
郭澜涛, 牧凯军, 邓朝, 等. 太赫兹波谱与成像技术[J]. *红外与激光工程*, 2013, 42(1): 51-56.
- [3] Liu Xiaomin, Wang Junqiao, Ma Fengying, et al. Terahertz detecting method using multi-reflection optical lever [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2012, 41(8): 2058-2062. (in Chinese)  
刘晓旻, 王俊俏, 马凤英, 等. 太赫兹辐射的多重反射光杠杆探测方法[J]. *红外与激光工程*, 2012, 41(8): 2058-2062.
- [4] Helmut Essen, Stefan Stanko, Rainer Sommer, et al. A high performance 220 -GHz broadband experimental radar [C]// *Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW -THz)*, 33rd International Conference, 2008: 1-1.
- [5] Sun Bo, Yao Jianquan. Generation of terahertz wave based on optical methods [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2006, 33(10): 1349-1359. (in Chinese)  
孙博, 姚建铨. 基于光学方法的太赫兹辐射源 [J]. *中国激光*, 2006, 33(10): 1349-1359.
- [6] Okorogu A O, Mirov S B, Lee W, et al. Tunable middle infrared downconversion in GaSe and AgGaS<sub>2</sub> [J]. *Optics Communications*, 1998, 155: 307-312.
- [7] Yi Jiang, Ding Yujie. Efficient terahertz generation from two collinearly propagating CO<sub>2</sub> laser pulses [J]. *Appl Phys Lett*, 2207, 91: 091108.
- [8] Dmitriev V G, Gurzadyan G G, Nikogosyan D N. *Handbook of Nonlinear Optical Crystals* [M]. Beijing: Higher Education Press, 2009: 162.
- [9] Kador L, Haarer D, Allakhverdiev K R, et al. Phase-matched second-harmonic generation at 789.5 nm in a GaSe crystal [J]. *Appl Phys Lett*, 1996, 69(6): 731-733.
- [10] Frits Zernike, Midwinter J E . *Applied Nonlinear Optics*[M]. New York: Wiley, 1973: 64-65.
- [11] Shi Shunxiang, Zhang Haixing, Liu Jinsong. *Physical and Applied Optics*[M]. Xi'an: Xidian Press, 2000: 203. (in Chinese)  
石顺祥, 张海兴, 刘劲松. *物理光学与应用光学*[M], 西安: 西安电子科技大学出版社, 2000: 203.
- [12] Shi Shunxiang, Chen Guofu, Zhao Wei, et al. *Nonlinear Optics*[M]. Xi'an: Xidian Press, 2003: 127. (in Chinese)  
石顺祥, 陈国夫, 赵卫, 等. *非线性光学*[M]. 西安: 西安电子科技大学出版社, 2003: 127.
- [13] Boyd R W. *Nonlinear Optics* [M]. Singapore: Elsevier Pte Ltd, 2008: 79.

## 下期预览

# 一种基于液晶光子晶体的高频开关

李文胜, 张 琴, 黄海铭, 付艳华

(湖北汽车工业学院, 湖北 十堰 442002)

**摘要:** 在高纯硅和 5CB 液晶组成的光子晶体中, 掺杂一装有电极的 5CB 液晶层作为调制层, 由此构成了一针对特定波长(900 nm)的光子晶体开关。利用传输矩阵计算了其透射谱, 结果表明, 控制调制层上电压的有、无, 就可以实现透射峰中心的移动, 从而达到该开关的通断, 当调制电压小于 5 V, 还可以准确控制透射峰的中心位置。该开关的结构周期以 6 至 7 为宜, 且有一定的角度宽容性, 特别适合小角度入射的情况。这些现象为此类光子晶体实现高频开关提供了理论指导。