

文章编号: 1672-8785(2012)09-0035-06

基于 CO₂ 激光的 AgGaS₂ 差频产生太赫兹波的数值分析

王翠玲 徐世林

(山东科技大学理学院青岛市太赫兹技术重点实验室, 山东 青岛 266590)

摘 要: 采用中红外 CO₂ 激光差频产生太赫兹波是提高转换效率和输出功率的一种有效方法。根据差频过程中的三波互作用对 AgGaS₂ 晶体进行了理论分析, 数值模拟了 oeo 类和 oee 类两种匹配条件下差频产生太赫兹波的角度调谐曲线, 并计算了光波在晶体中的走离角和允许参量。另外, 还考虑了晶体的有效非线性系数和理论功率转换效率。研究表明, AgGaS₂ 晶体适用于中红外 CO₂ 激光差频产生可广泛调谐的太赫兹波。

关键词: 太赫兹波; 差频; 相位匹配; CO₂ 激光; AgGaS₂ 晶体

中图分类号: O437 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3969/j.issn.1672-8785.2012.09.007

Numerical Simulation of Terahertz Wave Generation in AgGaS₂ Crystal Based on CO₂ Laser

WANG Cui-ling, XU Shi-lin

(Qingdao Key Laboratory of Terahertz Technology, College of Science, Shandong University of Science and Technology, Qingdao 266590, China)

Abstract: Using a mid-infrared CO₂ laser in terahertz difference frequency generation (THz-DFG) is an effective method for improving conversion efficiency and output power. According to the three-wave interaction of difference frequency, the AgGaS₂ crystal is analyzed theoretically. The angle tunable curves of difference-frequency-generated THz wave under both oeo-type and oee-type phase matching conditions are simulated numerically. The walk-off angle and acceptable parameter of light wave in the crystal are calculated. In addition, the effective nonlinear coefficient and theoretical power conversion efficiency of the crystal are taken into account. The research result shows that the AgGaS₂ crystal is suitable for widely tunable THz-DFG with a CO₂ laser.

Key words: terahertz wave; difference frequency; phase matching; CO₂ laser; AgGaS₂ crystal

0 引言

太赫兹 (THz) 波是指频率在 0.1 ~ 10 THz (波长在 30 ~ 3000 μm) 范围内的电磁波。它位于电磁波谱中微波与红外光之间, 是宏观电子学向

微观光子学过渡的重要电磁波段。THz 波在物理、化学、分子光谱、生命科学、医药科学等基础研究领域和医学成像、环境监测、食品材料检测等应用研究领域均具有重大的科学研究价值和广阔的应用前景。太赫兹技术在分子波谱分

收稿日期: 2012-07-24

基金项目: 国家自然科学基金项目 (61001018); 山东科技大学春蕾计划 (2010AZZ083)

作者简介: 王翠玲 (1978-), 女, 山东莱芜人, 讲师, 硕士, 主要从事激光光源及太赫兹辐射源方面的研究。

E-mail: clwang6366@163.com

析、成像、安全检测以及医学光谱成像等应用领域已经受到了广泛的关注^[1-2]。然而到目前为止, THz 辐射源仍然是 THz 技术研究的最大瓶颈。光学太赫兹辐射源虽然在输出功率上不如电子学太赫兹辐射源,但是其具有波谱范围宽、小型化以及可调谐等特殊的优势。因此,提高太赫兹辐射源的输出功率及转换效率是光学太赫兹辐射源研制中的的核心问题。根据 Manley-Rowe 定律^[3],若采用工作波长在 10 μm 左右的 CO₂ 激光,较 1 μm 近红外激光泵浦源,其差频过程的量子转换效率将可提高一个数量级。近年来已有一些文献对 GaAs^[4]、GaSe^[4-6]、ZnGeP₂^[5-6] 和 AgGaSe₂^[7] 等几种晶体基于 CO₂ 激光产生太赫兹波的情况进行了分析,但同样作为一种经常用于非线性变频领域的黄铜矿晶体,AgGaS₂ 却尚未见报道。AgGaS₂ 是一种负单轴晶体,四方晶系,42m 点群,黄铜矿结构。其色散较小,在 0.47 ~ 13 μm ^[8] 范围内具有优良的透光性能,并且具有非线性系数较大、双折射 $\Delta n_y (\Delta n = n_e - n_o)$ 适宜以及可满足三波在透光波段的相位匹配等特点。本文基于非线性光学的共线相位匹配技术,采用以 CO₂ 激光为泵源的差频方法产生太赫兹波,然后通过数值计算得到 AgGaS₂ 晶体在各种相位匹配类型下的相位匹配角、走离角、允许参量、有效非线性系数和转换效率,并对结果进行分析,最后总结出基于 CO₂ 激光差频产生太赫兹波的最佳相位匹配条件,为实验研究提供参考。

1 相位匹配角

考虑参与差频过程的光波波长分别为 λ_1 、 λ_2 和 λ_3 , 其波矢分别为 k_1 、 k_2 和 k_3 。根据能量守恒和动量守恒,在共线相位匹配即三个光波的波矢方向相同时,有

$$\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_3} = 0 \quad (1)$$

$$\Delta k = \frac{2\pi n_1}{\lambda_1} - \frac{2\pi n_2}{\lambda_2} - \frac{2\pi n_3}{\lambda_3} = 0 \quad (2)$$

式中, λ_1 为泵浦光的波长,设定为 CO₂ 激光波长 10.64 μm ; λ_2 为闲频光的波长; λ_3 为输出 THz 波的波长。e 光与相位匹配角 θ 的关系表达式为

$$\frac{1}{n_e^2(\lambda, \theta)} = \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2(\lambda)} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2(\lambda)} \quad (3)$$

AgGaS₂ 晶体的色散方程^[8] (λ 的单位为 μm , $T=20^\circ\text{C}$) 为

$$n_o^2 = 3.3970 + \frac{2.3982\lambda^2}{\lambda^2 - 0.09311} + \frac{2.1640\lambda^2}{\lambda^2 - 950.0}$$

$$n_e^2 = 3.5873 + \frac{1.9533\lambda^2}{\lambda^2 - 0.11066} + \frac{2.3391\lambda^2}{\lambda^2 - 1030.7} \quad (4)$$

根据式 (1) ~ 式 (4) 可以计算出不同相位匹配类型下的角度调谐曲线。以 10.64 μm 激光作泵源时只能实现 oee 类和 oeo 类两种匹配,而且这两种匹配情况下的输出太赫兹曲线基本重合(见图 1)。从图 1 中可以看出,以 10.64 μm 激光作泵源时输出 THz 波的波长为 84.11 ~ 3000 μm , 相位匹配角为 $8.021^\circ \sim 90^\circ$, 由此可调谐产生绝大部分范围内的 THz 波。另外,我们还计算了以 1.064 μm 激光作泵源时输出的相位匹配情况。利用 1.064 μm 激光作泵源可以实现 eoo、eoe、oee 和 oeo 四种相位匹配方式。其中,前两种可实现中红外波长输出(见图 2),这与文献^[9]的报道基本吻合;后两种可实现太赫兹波输出,而且 oee 和 oeo 两种匹配方式输出的太赫兹波曲线也是基本重合的(见图 1),可实现 35.9 ~ 1200 μm 的太赫兹波输出。此时,调谐范围为 $3.896^\circ \sim 70.59^\circ$, 相对较窄。

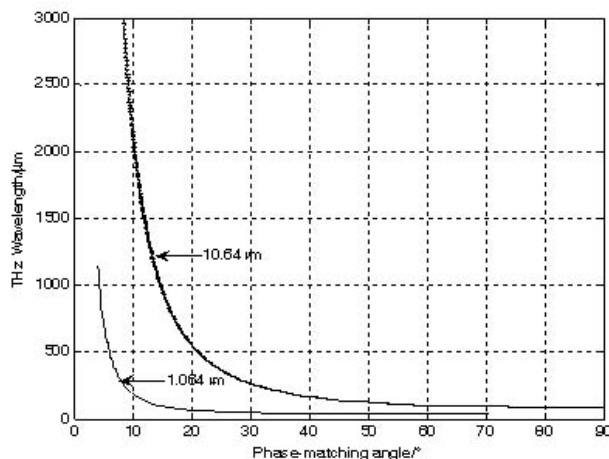


图 1 AgGaS₂ 晶体 oee 和 oeo 类差频角度相位匹配曲线

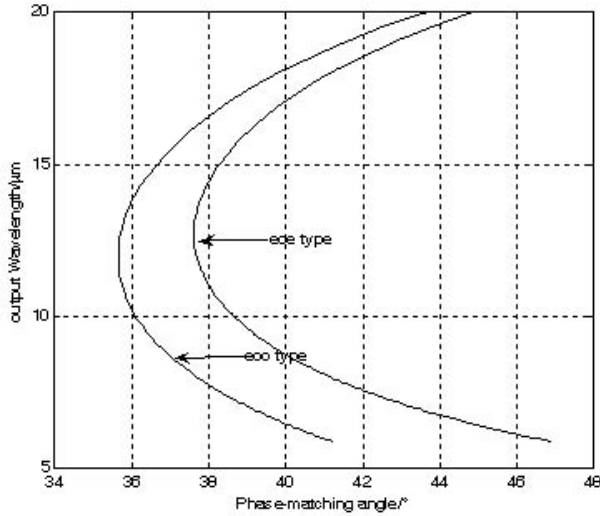


图 2 1.064 μm 波长泵浦时 AgGaS₂ 晶体 eoe 和 oeo 类角度相位匹配曲线

2 走离角

对于某一晶体, e 光和 o 光能流方向上存在走离现象, 因此实验中需要考虑走离角的大小。在单轴晶体中, o 光的走离角为 0, e 光的走离角为^[10]

$$\tan \alpha = \frac{1}{2} \frac{(n_o^2 - n_e^2)}{n_o^2 \sin^2 \theta + n_e^2 \cos^2 \theta} \cdot \sin 2\theta \quad (5)$$

根据已经计算的相位匹配角, 泵浦光的波长仍为 10.64 μm 。分别计算出 oeo 类和 oee 类相位匹配下闲频光 λ_2 的走离情况, 其结果见图 3。从图 3 中可以看出, oeo 类和 oee 类的闲频光波长与走离角变化曲线基本一致。当闲频光的波长为 12.19 μm 时, 走离角为 0。此时, 输出 THz 波的波长 λ_3 为 84.11 μm , 其相位匹配角为 90°, 即为非临界相位匹配。闲频光的波长在 11.48 μm 处, 走离角的最大值为 1.34°。在 oee 类相位匹配条件下, 输出太赫兹波为 e 光, 故 THz 波也存在走离现象。图 4 所示为 THz 波波长与走离角之间的关系。THz 波的波长为 203.8 μm , 走离角达到最大值 0.2393°, 此时相位匹配角 $\theta = 43.8^\circ$ 。从图 3 和图 4 中可以看出, 无论是泵浦光中的闲频光还是产生的太赫兹非常光, 它们的走离角都比较小, 在实际的实验中可以忽略不计。

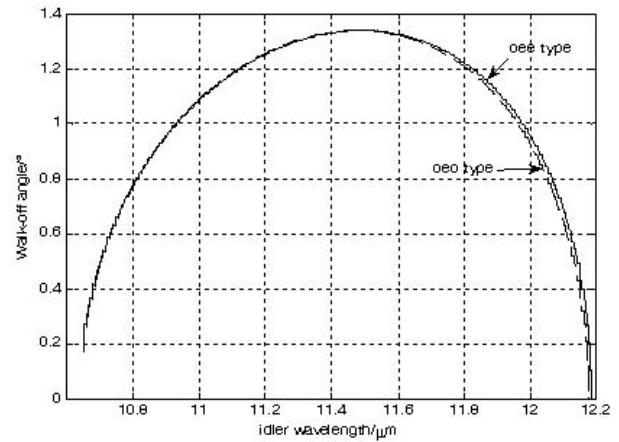


图 3 AgGaS₂ 晶体相位匹配条件下闲频光波长与走离角的关系

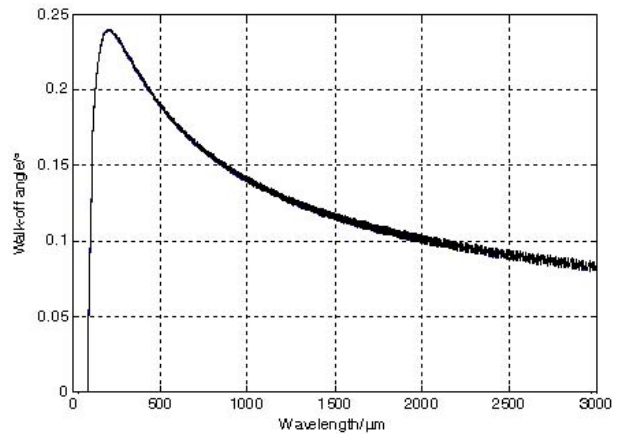


图 4 AgGaS₂ 晶体 oee 相位匹配条件下 THz 波长与走离角的关系

3 允许参量

当单轴晶体中的三波相互作用实现完全相位匹配时, $\Delta k = 0$, 频率转换效率最高。但实际中, 光波往往存在发散角等多种因素, 很难达到完全相位匹配, 因此三波相互作用时总会存在相位失配量 Δk 。一般定义最大允许失配量 $\Delta k = \pm \frac{\pi}{l}$ ^[10], 其中 l 为晶体长度, 即在 $\Delta k = 0$ 的两侧各有 $\frac{\pi}{l}$ 大小的允许失配量。这样, 可以由最大允许失配量 Δk 求得相位匹配的允许参量 $\Delta \theta \cdot l$ ^[7]。

$$\Delta \theta \cdot l = \frac{\pi}{d(\Delta k)/d\theta|_{\theta=\theta_m}} \quad (6)$$

式中, $\Delta \theta \cdot l$ 为允许参量, 它是由晶体材料的固有特性决定的。根据式 (2), 对于 oeo 类:

$$\frac{d\Delta k}{d\theta} = -\frac{2\pi}{\lambda_2} \frac{dn(\lambda_2, \theta)}{d\theta}$$

$$= \frac{\pi}{\lambda_2} n^3(\lambda_2, \theta) [n_e^{-2}(\lambda_2) - n_o^{-2}(\lambda_2)] \sin 2\theta \quad (7)$$

对于 oee 类相位匹配:

$$\begin{aligned} \frac{d\Delta k}{d\theta} &= -\frac{2\pi}{\lambda_2} \frac{dn(\lambda_2, \theta)}{d\theta} - \frac{2\pi}{\lambda_3} \frac{dn(\lambda_3, \theta)}{d\theta} \\ &= \frac{\pi}{\lambda_2} n^3(\lambda_2, \theta) [n_e^{-2}(\lambda_2) - n_o^{-2}(\lambda_2)] \sin 2\theta \\ &\quad + \frac{\pi}{\lambda_3} n^3(\lambda_3, \theta) [n_e^{-2}(\lambda_3) - n_o^{-2}(\lambda_3)] \sin 2\theta \quad (8) \end{aligned}$$

将式 (7) 和式 (8) 代入式 (6), 计算出 oeo 类和 oee 类相位匹配条件下闲频光波长与允许参量 $\Delta\theta \cdot l$ 之间的关系图 (见图 5)。同样计算出两类相位匹配条件下 THz 波波长与允许参量 $\Delta\theta \cdot l$ 之间的关系图 (见图 6)。在 oeo 类和 oee 类两种匹配条件下, 闲频光的波长均为 $11.42 \mu\text{m}$ 时允许参量达到最小值。oeo 类允许参量的最小值为 $106 \text{ mrad} \cdot \text{mm}$, oee 类允许参量的最小值为 $104.5 \text{ mrad} \cdot \text{mm}$, 两者所对应的 THz 波波长均为 $\lambda_2 = 155.8 \mu\text{m}$ 。以上结果与图 6 中两种匹配条件下 THz 波波长均在 $156 \mu\text{m}$ 处时允许参量达到最小值的情况相吻合。另外, 从图 6 中可以看出, 当太赫兹波的波长大于 $156 \mu\text{m}$ 时, 波长越长, 允许参量越大。因此, 长波长太赫兹波的产生更有利于实验中的相位匹配操作。

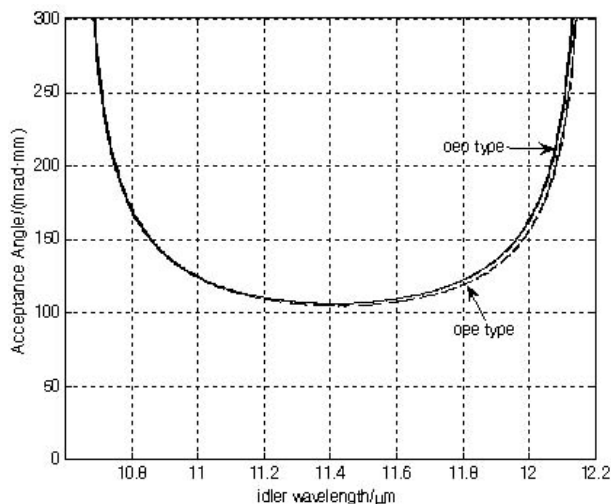


图 5 AgGaS₂ 晶体相位匹配条件下闲频光波长与允许参量的关系

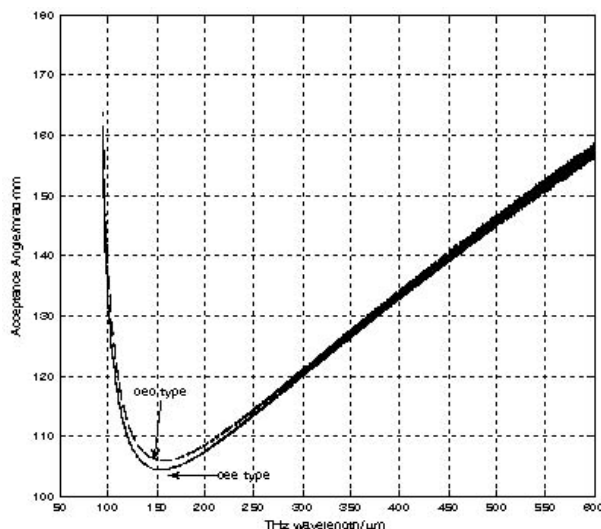


图 6 AgGaS₂ 晶体相位匹配条件下 THz 波波长与允许参量的关系

4 有效非线性系数

差频过程中三波的相互作用除了要考虑相位匹配的情况, 还需要考察晶体有效非线性系数的大小。AgGaS₂ 晶体 oeo 类和 oee 类相位匹配的有效非线性系数为 [8]

$$\begin{aligned} d_{eff}^{oeo} &= d_{36} \sin 2\theta \cos 2\varphi \\ d_{eff}^{oee} &= d_{36} \sin \theta \sin 2\varphi \quad (9) \end{aligned}$$

式中, $d_{36} = 12.5 \text{ pm/V}$ 。为了优化 d_{eff} , 可通过旋转晶体使方位角满足 $|\cos 2\varphi| = 1$ 或者 $|\sin 2\varphi| = 1$ 。由式 (9) 可以简单计算出相位匹配时闲频光波长与有效非线性系数的关系以及 THz 波波长与有效非线性系数的关系, 其结果分别见图 7 和图 8。图 7 中, 两条曲线相交于闲频光波长 $11.87 \mu\text{m}$ 处, 相应的 THz 波波长为 $102.68 \mu\text{m}$, 有效非线性系数 $d_{eff} = 10.9 \text{ pm/V}$ 。由图 7 和图 8 可知, 在绝大部分的相位匹配区域内, oee 类匹配的有效非线性系数比 oeo 类匹配的大。尤其是在输出 THz 波的波长大于 $144 \mu\text{m}$ 的区域内, oee 类匹配的有效非线性系数接近 oeo 类匹配的两倍。所以, 输出 THz 波在绝大部分区域内适合采用 oee 类相位匹配。

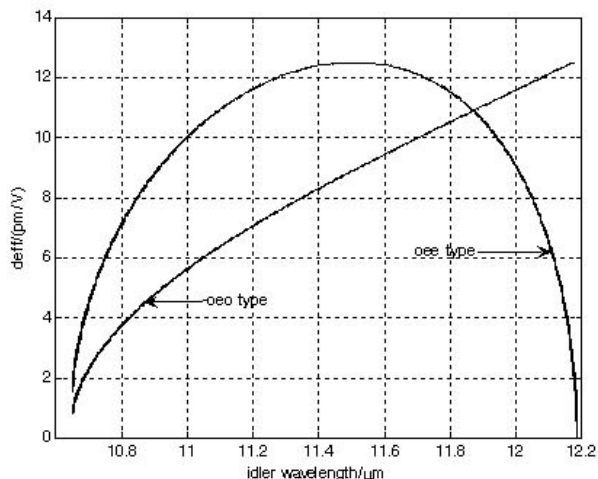


图 7 AgGaS₂ 晶体有效非线性系数与闲频光波长的关系

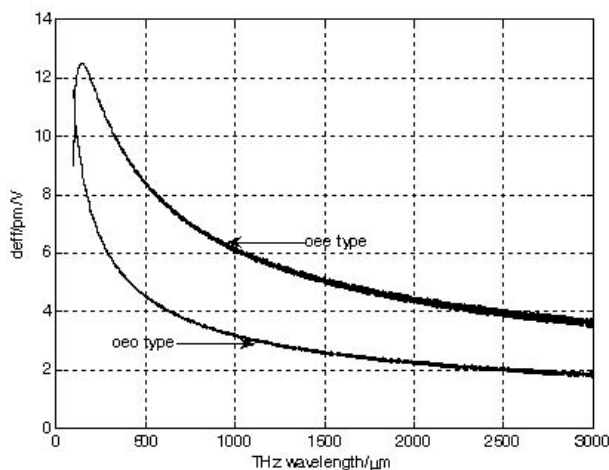


图 8 AgGaS₂ 晶体有效非线性系数与 THz 波波长的关系

5 转换效率

功率转换效率是评价晶体优劣的重要参数之一。在满足相位匹配时, 不考虑晶体对太赫兹波的吸收。在近场平面波近似的情况下, 差频过程的功率转换效率被定义为^[4]

$$\eta = \frac{p_3}{p_1} = \frac{8\pi^2 d e f^2 l^2 p_2}{\varepsilon_0 c n_1 n_2 n_3 \lambda_3^2 A} \quad (10)$$

式中, 晶体长度 l 取 1 cm; 泵浦功率密度 p_2/A ^[4] 为 10 MW/cm²。图 9 所示为功率转换效率的理论计算结果。在采用 oee 类匹配方式时, 在 108.1 μm 太赫兹波长处, 转换效率有一极大值。当太赫兹波的波长小于 102.8 μm 时, oeo 类匹配方式

的转换效率要高于 oee 类; 当太赫兹波的波长大于 102.8 μm 时, oee 类匹配方式的转换效率要高于 oeo 类, 这与图 8 中的结果相互吻合。

6 结论

本文基于非线性光学差频过程的相位匹配技术, 对 CO₂ 激光器泵浦 AgGaS₂ 晶体差频产生太赫兹波进行了模拟计算。模拟结果表明, 在以 10.64 μm 激光作为泵浦光时, AgGaS₂ 晶体可实现 oee 类和 oeo 类两类相位匹配方式, 并且都具有非常宽的角度调谐范围。此时, 输出 THz 波可达到 84 μm 以上的广泛调谐。另外还计算出三波相互作用时 e 光的走离角及允许参量。两类相位匹配时, e 光走离角都比较小, 允许参量都足够大, 有利于实验设计和精细调节。从 oee 类和 oeo 类的有效非线性系数和转换效率来看, 若要产生 102.8 μm 以下的太赫兹波, 宜采用 oeo 类匹配方式; 若要产生波长大于 102.8 μm 的太赫兹波, 则宜采用 oee 类匹配方式。以上数值计算结果可以为 AgGaS₂ 晶体差频产生可调谐太赫兹波的实验研究提供参考。

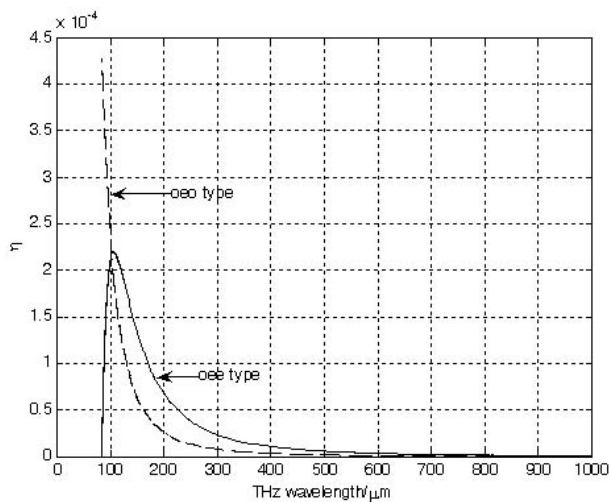


图 9 AgGaS₂ 晶体功率转换效率与 THz 波波长的关系

参考文献

- [1] Zhang X C. Materials for Terahertz Science and Technology [J]. *Nature Materials*, 2002, **26**(1): 26–33.
- [2] Siegel P H. Terahertz Technology [J]. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, 2002, **50**(3): 910–928.

- [3] Boyd R W. Nonlinear Optics (2nd Edition) [M]. San Diego: Academic Press, 2003.
- [4] Lu Y Z, Wang X B. Terahertz Generation in Nonlinear Crystals with Mid-Infrared CO₂ Laser [J]. *Chin Phys Lett*, 2011, **28**(3): 034201.
- [5] 刘欢, 徐德刚, 姚建铨. 基于 GaSe 和 ZnGeP₂ 晶体差频产生可调谐太赫兹辐射的理论研究 [J]. *物理学报*, 2008, **57**(9): 5662–5668.
- [6] Rao Z M, Wang X B, Lu Y Z. Tunable Terahertz Generation from One CO₂ Laser in a GaSe Crystal [J]. *Optics Communications*, 2011, **284**: 5472–5474.
- [7] 徐世林. AgGaSe₂ 晶体差频产生可调谐太赫兹波的理论研究 [J]. *强激光与粒子束*, 2010, **22**(11): 2653–2657.
- [8] Dmitriev V G, Gurzadyan G G, Nikogosyan D N. Handbook of Nonlinear Optical Crystals (3rd Edition) [M]. Berlin: Springer, 1999.
- [9] 宋月, 王丽. 利用 AgGaS₂ 与 AgGaSe₂ 晶体差频获得中红外射线的性能研究 [J]. *激光杂志*, 2007, **28**(4): 28–29.
- [10] 姚建铨. *非线性光学频率变换及激光调谐技术* [M]. 北京: 科学出版社, 1995.

(上接第 29 页)

- [4] Adler-Golden S M, Smith D R, Vail J, et al. Simulations of Mesospheric and Thermospheric IR Radiance Measured in the CIRRI-1A Shuttle Experiment [J]. *Journal of Atmospheric and Solar Terrestrial Physics*, 1999, **61**(18): 1397–1410.
- [5] Robert O, Harold A B. MSX: Remotely Sensed Observations of Atmospheric Infrared Radiance and Spatial Structure [C]. *SPIE*, 2002, **4539**: 446–453.
- [6] Robert R O, Harold A B. Midcourse Space Experiment (MSX): Plans and Capability for the Measurement of Infrared Earthlimb and Terrestrial Backgrounds [C]. *SPIE*, 1994, **2223**: 264–273.
- [7] Lopez-Puertas M, Bernd F, Sergio G I, et al. Atmospheric Non-local Thermodynamic Equilibrium Emissions as Observed by the Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MPIAS) [J]. *Spectroscopy and Planetary Atmospheres*, 2005, **6**(8): 848–863.
- [8] 高红, 徐寄遥, 陈光明, 等. TIMED 卫星测量得到的 OH 和 O₂ (1.27 μm) 夜气辉全球分布特征 [J]. *中国科学: 技术科学*, 2011, **41**(3): 374–384.
- [9] 吕达仁, 陈泽宇, 郭霞, 等. 临近空间大气环境研究现状 [J]. *力学进展*, 2009, **39**(6): 674–682.
- [10] Brown J H, Sundberg R L, Acharya P K, et al. User's Manual For SHARC-4, The Strategic High-Altitude Radiance Code, ADA329472 [R]. Hanscom: Phillips Lab, 1997.
- [11] Ree M H. Physics and Chemistry of the Upper Atmosphere [M]. London: Cambridge University Press, 1989.
- [12] Lopez-Puertas M, Taylor F W. Non-LTE Radiative Transfer in the Atmosphere [M]. Singapore: World Scientific Publishing Co Pte Ltd, 2003.
- [13] 魏合理, 陈秀红, 饶瑞中. 通用大气辐射传输软件 (CART) 介绍 [J]. *大气与环境光学学报*, 2007, **2**(6): 446–450.
- [14] 徐寄遥, 纪巧, 袁炜, 等. TIMED 卫星探测的全球大气温度分布及其与经验模式的比较 [J]. *空间科学学报*, 2006, **26**(3): 177–182.
- [15] Picone J M, Hedin A E, Drob D P. NRLMSIS-00 Empirical Model of the Atmosphere: Statistical Comparisons and Scientific Issues [J]. *JGR*, 2002, **107**: 151–156.
- [16] Sharma R D, O'Neil R, Gardiner H, et al. Mid-course Space Experiment: Auroral Enhancement of Nitric Oxide Medium-wave Infrared Emission Observed by the Spatial Infrared Imaging Telescope III Radiometer [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2001, **106**(21): 351–365.
- [17] Duff J W, Dothe H, Shama R D. A First-principles Model of Spectrally Resolved 5.3 μm Nitric Oxide Emission from Aurorally Dosed Nighttime High-altitude Terrestrial Thermosphere [J]. *Geophysical Research Letters*, 2005, **32**: L17108.