2025年2月

Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology

文章编号: 2095-4980(2025)02-0073-11

# 太赫兹参量辐射源研究进展

张敬喜 a,b, 王与烨\*a,b, 徐炳烽 a,b, 马鸿儒 a,b, 刘紫鲲 a,b, 徐德刚 a,b, 姚建铨 a,b (天津大学 a.精密仪器与光电子工程学院; b.光电信息技术教育部重点实验室, 天津 300072)

摘 要:基于受激电磁耦子散射(SPS)的太赫兹参量辐射源是一种光学相干太赫兹辐射源,具有高相干性、频率可调谐、室温运转等优点。本文首先介绍了基于受激电磁耦子散射的基本原理、常用的非线性晶体和耦合技术,重点总结了近年来国内外在增益提升和输出性能提升方面的典型技术与研究成果,以及太赫兹辐射源在物质浓度检测中的应用研究进展,最后分析了太赫兹参量辐射源的关键技术问题以及发展趋势。

关键词: 非线性光学; 太赫兹参量源; 受激电磁耦子散射; 非线性晶体

中图分类号: TN29

文献标志码:A

doi: 10.11805/TKYDA2024326

## Research progress of terahertz parametric radiation sources

ZHANG Jingxi<sup>a,b</sup>, WANG Yuye<sup>\*a,b</sup>, XU Bingfeng<sup>a,b</sup>, MA Hongru<sup>a,b</sup>, LIU Zikun<sup>a,b</sup>, XU Degang<sup>a,b</sup>, YAO Jianquan<sup>a,b</sup>
(a.School of Precision Instruments and Optoelectronics Engineering; b.Key Laboratory of Optoelectronic Information Technology,

Ministry of Education, Tianjin University, Tianjin 300072, China)

Abstract: A terahertz parametric radiation source based on Stimulated Polariton Scattering (SPS) is an optically coherent terahertz source, characterized by high coherence, frequency tunability, and operation at room temperature. The basic principle of terahertz parametric radiation based on SPS, commonly used nonlinear crystals, and coupling techniques are firstly introduced. Then typical techniques and research achievements in recent years, both domestical and international, are summarized regarding gain enhancement and output performance improvement. Additionally, the progress in the application of terahertz radiation sources in material concentration detection is reviewed. Finally, the key technical issues and development trends of terahertz parametric radiation sources are analyzed.

**Keywords:** nonlinear optics; terahertz parametric source; Stimulated Polariton Scattering(SPS); nonlinear crystal

太赫兹(Terahertz, THz)波是指频率在 0.1~10 THz 范围内的电磁波,对应波长范围为 3 mm~30 μm,具有诸多优点:如低能性,不会对样品造成损伤;许多有机和无机化合物对该波段有强烈吸收特性,因此表现出指纹谱特性;该波段具有更高的频率,可获得更大的带宽。因此,THz 波在安全检测、通信、无损评估、生物医学成像和分子分析等方面具有广泛的应用前景<sup>[1-2]</sup>。

在众多产生 THz 波的光学方法中,基于非线性晶体受激电磁耦子散射(SPS)的太赫兹参量辐射源具有宽带可调谐、窄线宽、高能量等优点,且该辐射源结构简单,成本低并可在室温下运行<sup>[3-7]</sup>。本文在介绍 SPS 基本原理后,从受激电磁耦子晶体、太赫兹波耦合方式两方面介绍目前成熟且常用的非线性晶体以及耦合方式;然后围绕增益提升和输出性能提升从结构设计、种子注入、泵浦结构优化及泵浦源参数优化4个方面对太赫兹参量辐射源的研究进展及现状进行梳理,总结归纳了各类辐射源的优势和不足,以太赫兹辐射源在物质浓度的检测为例,介绍了太赫兹技术在太赫兹物质检测领域的进展;最后讨论并展望太赫兹参量辐射源技术的未来发展趋势。

收稿日期: 2024-06-25; 修回日期: 2024-08-26

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(U22A20353; U22A20123; 62175182; 6227519)

\*通信作者: 王与烨 email:yuyewang@tju.edu.cn

## 1 THz 参量辐射源的基本原理

### 1.1 基于 SPS 过程的太赫兹参量产生动力学过程

横向晶格振动模式与电磁波发生耦合形成的准粒子称为电磁耦子(polariton)。图 1 为长波极性晶格振动模的色散关系曲线,其中实线 1、2 分别为晶格振动和电磁波发生耦合时横向光学(Transverse Optical,TO)模或电磁耦子低频支、高频支的色散曲线,虚线 3 为晶格振动和电磁波发生耦合时纵向光学(Longitudinal Optical,LO)的色散曲线。由曲线 1 可知,电磁耦子在接近晶格振动本征频率处以机械振动进行传播,表现为类声子特性。电磁耦子在远离晶格振动频率处以低频电磁波进行传播,表现为类光子特性。具体产生太赫兹波的过程如图 2 所示,当恰处于太赫兹波段的电磁耦子与泵浦光子 $\omega_{\rm P}$ 发生碰撞,产生一个斯托克斯(Stokes)光子 $\omega_{\rm S}$ 与一个受激电磁耦子 $\omega_{\rm T}$ (满足 $\omega_{\rm T}$ = $\omega_{\rm P}$ - $\omega_{\rm S}$ )。该受激电磁耦子与泵浦光子再次碰撞会接着产生一个 Stokes 光子,同时伴随一个受激电磁耦子产生。当泵浦光足够强的时候,上述过程会不断重复,形成雪崩过程,该过程称为 SPS 过程,产生的受激电磁耦子的振动频率恰好处于太赫兹波段。

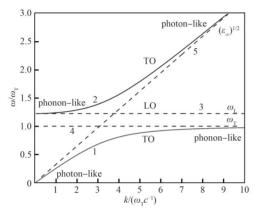


Fig.1 Dispersion of polar lattice vibration modes 图 1 极性晶格振动模式色散曲线

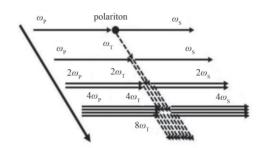


Fig.2 Schematic diagram of the SPS 图 2 受激电磁耦子散射示意图

SPS 过程是泵浦光、Stokes 光、晶格振动场以及对应的太赫兹辐射场的互作用过程。斯坦福大学 Sussman 推导了电磁场之间的耦合波方程组,在满足相位匹配条件情况下,SPS 过程描述为<sup>[8]</sup>:

$$(\nabla^2 + \frac{\omega_{\mathrm{T}}^2}{c^2} \varepsilon_{\mathrm{T}}) \mathbf{E}(\omega_{\mathrm{T}}) = -\frac{\omega_{\mathrm{T}}^2}{c^2} \left( d_{\mathrm{E}}' + \frac{\Omega_{\mathrm{P}}^2 d_{\mathrm{Q}}'}{\omega_{\mathrm{P}}^2 - \omega_{\mathrm{T}}^2 - \mathrm{i} \Gamma \omega_{\mathrm{T}}} \right) \mathbf{E}(\omega_{\mathrm{P}}) \mathbf{E}(\omega_{\mathrm{S}})^*$$
(1)

$$(\nabla^{2} + \frac{\omega_{S}^{2}}{c^{2}} \varepsilon_{\omega_{S}}) \mathbf{E}(\omega_{S}) = -\frac{\omega_{S}^{2}}{c^{2}} \left[ \left( d_{E}' + \frac{\Omega_{P}^{2} d_{Q}'}{\omega_{0}^{2} - \omega_{T}^{2} + i\Gamma \omega_{T}} \right) \mathbf{E}(\omega_{P}) \mathbf{E}(\omega_{T})^{*} + \frac{\Omega_{P}^{2} d_{Q}'^{2}}{\omega_{0}^{2} - \omega_{T}^{2} + i\Gamma \omega_{T}} \left| \mathbf{E}(\omega_{P}) \right|^{2} \mathbf{E}(\omega_{S}) \right]$$

$$(2)$$

$$(\nabla^{2} + \frac{\omega_{P}^{2}}{c^{2}} \varepsilon_{\omega_{P}}) \boldsymbol{E}(\omega_{P}) = -\frac{\omega_{P}^{2}}{c^{2}} \left[ \left( d_{E}' + \frac{\Omega_{P}^{2} d_{Q}'}{\omega_{0}^{2} - \omega_{T}^{2} - i\Gamma \omega_{T}} \right) \boldsymbol{E}(\omega_{S}) \boldsymbol{E}(\omega_{T}) + \frac{\Omega_{P}^{2} d_{Q}'^{2}}{\omega_{0}^{2} - \omega_{T}^{2} - i\Gamma \omega_{T}} \left| \boldsymbol{E}(\omega_{S}) \right|^{2} \boldsymbol{E}(\omega_{P}) \right]$$

$$(3)$$

式中: $E(\omega_T)$ 、 $E(\omega_S)$ 、 $E(\omega_P)$ 分别为角频率为 $\omega_T$ 、 $\omega_S$ 、 $\omega_P$ 的太赫兹波、Stokes光、泵浦光的振幅; $\omega_0$ 为本征频率; $\varepsilon_T$ 、 $\varepsilon_{\infty S}$ 、 $\varepsilon_{\infty P}$ 分别为 THz 波的介电常数、Stokes光的高频介电常数、泵浦光的高频介电常数;c 为光速; $\Gamma$ 为晶格阻尼系数; $d_E'=4\pi d_E$ , $d_E$ 为晶体的电子非线性系数; $d_Q'=d_Q/e$ , $d_Q$ 为晶体的离子非线性系数; $\Omega_P^2=4\pi Ne^2/\mu$ ,N、e、 $\mu$ 分别为单位体积内原胞数量、横向晶格振动的电荷量、振子的约化质量。

式(1)描述了太赫兹辐射场的产生过程,太赫兹波产生过程是参量过程,因此将基于SPS 过程的太赫兹辐射源称为太赫兹参量辐射源。式(2)描述了 Stokes 光产生过程,其右侧第一项为二阶参量过程,表示能量交换发生在泵浦光、Stokes 光、太赫兹辐射场之间;右侧第二项为泵浦光与晶格振动场的非线性碰撞过程,能量交换发生在晶格振动场、泵浦光和 Stokes 光之间,是三阶非线性过程。根据 Stokes 光是否在 Stokes 谐振腔内振荡,将太赫兹参量辐射源分为太赫兹参量产生器 (Terahertz Parametric Generator,TPG)与太赫兹参量振荡器 (Terahertz Parametric Oscillator,TPO)。式(3)描述了泵浦光消耗过程,其过程与 Stokes 光产生过程类似,包含二阶和三阶非线性过程。

综上所述, 当足够强的泵浦光场与晶体中的电磁耦子作用, 激发 SPS 过程产生 Stokes 光和受激电磁耦子(即

太赫兹辐射场)。同时,泵浦光场、Stokes 光场与太赫兹辐射场在晶体中电子和离子运动极化作用下发生二阶参量过程,在进一步消耗泵浦光场的同时,对Stokes 光场和太赫兹辐射场进行放大,最终实现高强度的太赫兹波输出。

## 1.2 太赫兹参量产生的相位匹配过程

由于THz波和近红外光(泵浦光、Stokes 光)的折射率相差较大,通常只有非共线相位匹配条件可实现太赫兹参量过程。太赫兹参量产生过程需满足能量守恒 $|k_T|^2$ = $|k_P|^2+|k_S|^2-2|k_P||k_S|\cos\theta$ 和动量守恒 $\omega_T=\omega_P-\omega_S$ 。其中 $\theta$ 为泵浦光与Stokes光的夹角,波数k与频率 $\omega$ 满足 $k=n\omega/c$ ,其相位匹配示意图如图 3 所示。以铌酸锂晶体(LiNbO<sub>3</sub>,LN)为例求解相位匹配条件,结果如图 4 所示。其中k的实部和虚部分别表示色散和吸收,色散曲线与相位匹配线的交点即为满足相位匹配条件。可以看出,随着 $\theta$ 角度的增大,太赫兹频率随之增大,这意味着可通过改变泵浦光和Stokes光的夹角实现宽频范围内的太赫兹波调谐输出。

## 2 受激电磁耦子散射晶体

目前常用于太赫兹参量辐射源的非线性晶体主要包

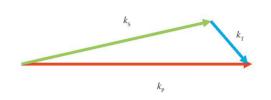


Fig.3 Nonlinear phase matching conditions 图 3 非线性相位匹配条件示意图

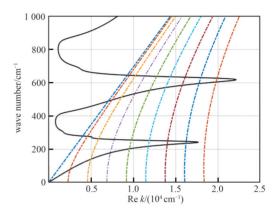


Fig.4 Nonlinear phase matching conditions of terahertz parametric process based on LN crystal

图4 基于LN晶体的太赫兹参量过程的非线性相位匹配条件

括 LN 晶体和磷酸氧钛钾(KTiOPO<sub>4</sub>, KTP)类晶体。LN 晶体主要包括非掺杂 LN 晶体、掺 5 mol% MgO 同成分铌酸锂(5 mol% MgO:CLN)、掺 1 mol% MgO 近化学计量比铌酸锂(1 mol% MgO:SLN)。LN 晶体具有较高的非线性系数,同时其最低阶 A1 对称模所形成的电磁耦子频率处于太赫兹波段,因此是最早用于太赫兹参量辐射源的非线性晶体之一,但受限于单一的振动模性质和 LN 晶体较低的损伤阈值,基于该晶体的太赫兹参量辐射源很难实现覆盖高频太赫兹波的输出。KTP 类晶体主要包括 KTP 晶体、砷酸钛氧钾(KTiOAsO<sub>4</sub>, KTA)晶体和磷酸钛氧铷(RbTiOPO<sub>4</sub>, RTP)晶体。由于 KTP 类晶体在太赫兹波段具有多阶电磁耦子,可实现高于 3 THz 的高频太赫兹波输出。

#### 2.1 LN晶体

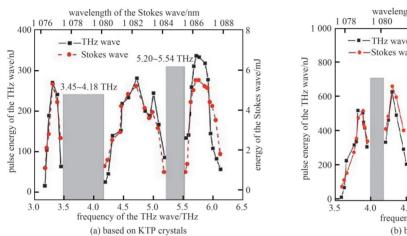
LN 晶体是太赫兹参量辐射源最常用的晶体,在近红外波段具有高透明性、高非线性以及成熟的生长工艺等优点,且具有稳定的机械性能和较低的热膨胀系数。同时 LN 晶体具有很高的二阶和三阶非线性系数,在 LN 晶体中具有拉曼活性和红外活性的最低阶 A1 横向光学振动模式(*k*=252 cm<sup>-1</sup>)恰好处于太赫兹波段,因此可利用该振动模通过 SPS 过程产生太赫兹波。

在20世纪60年代,科学家利用LN晶体产生太赫兹波,但受到晶体损伤阈值较低和生长工艺的限制,基于该晶体的太赫兹参量辐射源并未得到充分的发展。在20世纪90年代,对LN晶体的研究和生长工艺有了很大提升。科研人员研究发现在LN晶体中掺杂MgO可将其光学损伤阈值提升2个数量级以上[9-10],同时掺杂MgO后可增加A1模式的自发拉曼散射截面面积,因此基于5 mol% MgO:CLN的 TPO 辐射源效率是未掺杂LN晶体的5倍[11]。当MgO以1~10 mol%的浓度掺杂时,研究发现掺杂浓度为5 mol%时,太赫兹参量辐射源的输出性能最佳[12]。与同成分MgO:LN晶体相比,SLN晶体具有较大的拉曼散射截面和较低的吸收系数[13]。采用SLN晶体可将太赫兹参量辐射源的调谐范围由3 THz拓展至5 THz,且平均功率可提升2.75倍[14-16]。但目前SLN晶体的生长工艺不成熟,大尺寸晶体较难生长且价格昂贵,因此研究人员通常采用5 mol% MgO:CLN晶体作为太赫兹参量辐射源的非线性晶体。

#### 2.2 KTP、RTP和KTA

KTP、RTP和KTA晶体具有相似的晶体结构以及振动模特性,在太赫兹波段都具有多阶电磁耦子且同时具有红外活性和拉曼活性,是极具潜力的受激电磁耦子散射晶体。

KTP 晶体具有较高的光学损伤阈值和较大的非线性系数。1990年,XU等[17]研究了 KTP 晶体中电磁耦子的色散特性。2014年,山东大学张行愚团队报道了基于 KTP 晶体的太赫兹参量振荡器,实现了 3.17~6.13 THz 范围内的间断输出,在 5.72 THz 处实现最高能量 336 nJ/pulse 的输出,其结果如图 5(a)所示[18]。KTA 晶体同样具有较高的激光损伤阈值及二阶非线性系数,广泛用于非线性光学领域。2014年,山东大学张行愚团队报道了基于 KTA 晶体的太赫兹参量振荡器,实现了 3.59~6.43 THz 频率范围内间断调谐输出,在 4.30 THz 处获得最大能量为627 nJ 的太赫兹波,输出结果如图 5(b)所示[19]。RTP 晶体最早在 2016 年用于太赫兹参量辐射源,澳大利亚麦考瑞大学的 H M Pask 团队实验研究了 RTP 晶体多阶电磁耦子散射特性,采用内腔泵浦结构在 3.8 THz 实现了最大输出平均功率为 16.2 μW 的输出,结果如图 6 所示[20]。通过实验结果可知,KTP、KTA、RTP 晶体都可实现高频输出,但由于在某些区间电磁耦子的电磁辐射能比例较低,吸收系数较大,导致其输出存在多个间隙。2021 年,天津大学采用脉冲种子注入技术,有效提升了 KTP 晶体中电磁辐射能比例,增强 Stokes 光的初始能量,实现了 2.93~6.21 THz 的连续输出[21]。



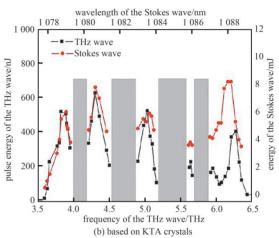


Fig.5 Output tuning characteristics of SPS terahertz radiation source based on KTP crystals and KTA crystals 图 5 基于KTP晶体和KTA晶体的SPS太赫兹辐射源输出调谐特性

## 3 太赫兹波耦合技术

由于受激电磁耦子散射晶体在近红外波段和太赫兹波 段的吸收系数和折射率有较大差异,因此只能满足非共线 相位匹配条件。由图 3 可知太赫兹波与泵浦光夹角较大, 在晶体内部容易发生全反射。此外,太赫兹波从晶体耦合 到自由空间过程中还存在强吸收损耗,因此太赫兹波从晶 体内部传播至自由空间的高效耦合技术是科学家们亟待解 决的问题之一。

最初开发的耦合方法是切角法,即在太赫兹波出射方向上对晶体进行切割,通过从晶体表面垂直出射实现太赫兹波的耦合输出。此方法不足之处在于太赫兹波大都被晶体吸收,耦合效率极低<sup>[22]</sup>。1996年,日本理化学研究所Kawase等<sup>[23]</sup>提出在LN晶体输出表面刻蚀光栅,利用光栅的衍射效应不仅提升了太赫兹波在晶体表面处的耦合效率,还避免了太赫兹波在晶体表面处的吸收。该耦合技术

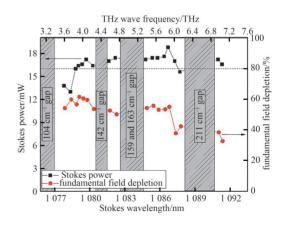


Fig.6 Output tuning characteristics of SPS terahertz radiation source based on RTP crystal
图 6 基于RTP晶体的 SPS 太赫兹辐射源输出调谐特性

相较于切角法可使太赫兹波耦合效率提升 250 倍,但由太赫兹波的宽调谐范围和衍射方程可知太赫兹波的输出方向易发生较大变化。采用低色散硅棱镜对太赫兹波耦合输出,可使太赫兹波频率调谐过程中输出方向的变化速率比光栅耦合法小 3 600 倍,但单硅棱镜无法覆盖太赫兹波全部输出区域,因此采用硅棱镜阵列增大输出耦合面积<sup>[24]</sup>。2001 年,日本理化学研究所 Kawase 等<sup>[25]</sup>采用阵列硅棱镜耦合方法使耦合效率比单棱镜高出 6 倍,同时太赫兹波远场发散角变小。硅棱镜耦合方法将太赫兹波倾斜出射使太赫兹波的波前不一致,因此科学家采用浅表面垂直出射方法使太赫兹波垂直出射且不需任何耦合器件,减少耦合过程的太赫兹波吸收,同时具有高强度输

出和高光束质量<sup>[26]</sup>。在全反射区域容易引起晶体损伤,因此澳大利亚 Ortega 等<sup>[27]</sup>基于浅表面出射结构在输出表面镀 Teflon 膜保护泵浦激光对晶体表面的损伤。由实验可知,采用 Teflon 镀膜可将太赫兹输出平均提升 2.8 倍。考虑到浅表面出射结构中泵浦光全反射一次,太赫兹波只能在全反射附近区域输出,其他区域的太赫兹波由于 LN 晶体的强吸收无法出射。山东大学王伟涛等<sup>[28]</sup>提出浅表面多点垂直出射结构,泵浦光在板条形晶体内部多次全反射,太赫兹波也随之在多点出射,基于该结构的太赫兹输出强度比单点浅表面出射提高 3.56 倍。从上述耦合方法的发展看,目前流行的耦合方法分为两类:一类是通过设计晶体的形状使太赫兹波直接耦合出晶体,如采用浅表面垂直出射技术;另一类是通过其他介质使太赫兹波耦合出晶体,如硅棱镜。

## 4 增益提升与输出性能提升技术

目前太赫兹参量辐射源的发展主要从增益提升和输出性能两方面进行,常见的技术改进主要包含:结构设计、种子注入、泵浦结构优化、泵浦源参数优化等。

#### 4.1 结构设计

快速调谐是太赫兹参量辐射源进行光谱扫描的关键。传统太赫兹参量振荡源为满足相位匹配,将 Stokes 光谐振腔与非线性晶体置于电控转台整体转动,实现太赫兹频率调谐,调谐速度较慢。2001年,日本理化学研究所 Imai 等<sup>[29]</sup>提出采用扫描振镜和 1:1 望远镜对泵浦光入射 LN 晶体的角度进行调整,实现太赫兹波频率快速调谐,但该结构采用望远镜会对光束质量造成影响,同时结构较大。2009年,日本 Minamide 等<sup>[30]</sup>基于光栅罗兰圆结构提出一种结构简单、调谐速度快的环形腔结构。该结构只需改变振镜的角度,即可实现不同频率的 Stokes 光谐振,可在 8 s(50 次测量平均后所用时间)内完成 1.05~2.25 THz 范围的光谱测量。另外,角锥谐振腔结构具有抗失调、结构简单、空间增益均匀的特点。华中科技大学孙博等<sup>[31]</sup>基于角锥棱镜和平面镜构成太赫兹参量振荡腔。

该系统通过调节角锥棱镜的角度改变 Stokes 光与泵浦光的夹角,从而实现太赫兹频率快速调谐;同时将系统不稳定性降低至1.36%。但该结构在角锥棱镜的顶点处和三条棱边处会产生衍射损耗,使腔损耗增大,影响太赫兹波输出强度。由于浅表面垂直出射晶体结构具有损耗小,作用距离大等优点,天津大学杨振等[32]提出基于罗兰圆结构的 4 镜环形 TPO,实验装置如图 7 所示,输出光谱范围为 0.7~2.8 THz,单点扫描速度为 600 μs。与相同腔长的直腔结构相比,该环形腔结构在提升调谐速率的同时将输出强度提升 3.29 倍。

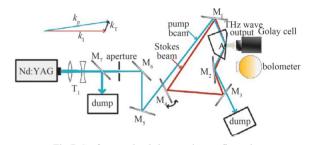


Fig.7 Surface-emitted ring-cavity configuration 图 7 浅表面输出环形腔结构的实验装置图

在外腔泵浦太赫兹参量辐射源系统中,泵浦光单次通过晶体,剩余泵浦光的能量造成浪费。2009年,美国海军实验室 D H WU 等<sup>[33]</sup>提出将剩余泵浦光通过反射镜再次注入太赫兹参量振荡腔,该系统的太赫兹波输出功率为单次泵浦的近 4 倍。但该结构中泵浦光与循环泵浦光仅有 47%~50% 的重叠区域,只能单次循环且太赫兹输出频率固定,无法实现太赫兹波频率调谐。因此天津大学 TANG等<sup>[16]</sup>提出基于环形腔的循环泵浦结构,剩余泵浦光与入射光完美重合再次注入太赫兹环形腔,实现泵浦光的重复利用。该系统基于 SLN 晶体实现了 1.24~3.77 THz 的太赫兹波输出。

#### 4.2 种子注入技术

目前从结构设计方面仅能提升调谐速率和泵浦利 用率,对于太赫兹波参量产生增益提升作用有限,因 此采用种子注入等技术提升增益。当注入窄线宽种子 源时,可压窄太赫兹波线宽。

2001年,日本理化学研究所 Imai 等[34]首次将窄线宽半导体激光器作为 Stokes 光种子源注入太赫兹参量振荡器,实验装置如图 8 所示,在 1.47 THz 处实现了线宽小于 200 MHz、单脉冲能量为 900 pJ 的太赫兹波输出。接着该团队采用窄线宽种子光注入 TPG 结构,使参量增益提升至少 2 个数量级的同时压窄线宽至百

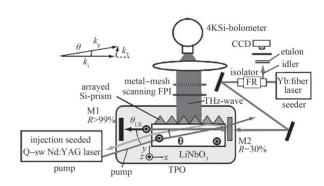


Fig.8 Experimental setup for an injection-seeded TPO using a LiNbO<sub>3</sub> crystal 图 8 基于铌酸锂晶体的种子注人太赫兹参量振荡器实验装置

MHz量级<sup>[35-37]</sup>。虽然采用种子注入技术可提升增益,但太赫兹波能量仍处于nJ水平。2015年,山东大学张行愚团队实验搭建了双路太赫兹参量振荡装置,其中一路太赫兹参量振荡器产生的 Stokes 光作为种子光注入另一路太赫兹参量产生器,在该过程中通过延时系统将注入的种子光与另一路泵浦光进行时域同步,将太赫兹波输出功率提升了 1.8 倍,但该系统在高频太赫兹处的输出仍较低<sup>[38]</sup>。2019年,天津大学 TANG等<sup>[15]</sup>从理论上提出提升 Stokes 光初始能量有助于提升太赫兹波参量增益,特别是有助于提升高频太赫兹波的输出能量。实验中,该团队采用基于 KTP 晶体的光参量振荡器(KTP-Optical Parametric Oscillator,KTP-OPO)产生高能量脉冲种子光注入 LN 晶体,使调谐范围拓宽至 5.15 THz,输出光谱的 3 dB 带宽拓展为 2.1 THz,且最大能量比无种子注入时高 34.7 倍。

除采用种子光技术外,研究人员还采用其他方法提升太赫兹参量辐射源的输出强度和拓宽太赫兹波频率调谐范围。2007年,日本理化学研究所 Hayashi 等[39]理论研究了平顶光和高斯光泵浦 LN 晶体对太赫兹波输出的影响,理论研究表明平顶光更靠近晶体输出表面,可避免高频太赫兹波被 LN 晶体强吸收。实验表明太赫兹波输出强度可提升 100 倍,调谐范围可拓宽 2 倍。2016年,日本理化学研究所 Kosuke Murate 等[13]将 LN 晶体微角度倾斜,使光束中心更靠近晶体表面,避免 LN 晶体对高频太赫兹波的强吸收,利用 SLN 晶体将太赫兹参量调谐频率从 3 THz 拓宽至 5 THz。

#### 4.3 泵浦结构优化

根据太赫兹参量振荡/产生装置与泵浦激光的相对位置,可将太赫兹参量辐射源分为外腔泵浦和内腔泵浦。 4.1 和4.2 节所述方法和技术都是基于外腔泵浦结构的太赫兹参量辐射源,外腔泵浦结构可产生大能量太赫兹波, 但该方法的泵浦阈值较大。本文将外腔泵浦结构的代表性数据进行整理归纳,具体数据如表1所示。采用内腔泵 浦结构可利用腔内的高功率密度,避免对高能量泵浦源的需求,结构简单。另外,该方法可获得高峰值功率的 太赫兹波输出。本文将内腔泵浦的代表性数据进行整理归纳,具体数据如表2所示。

表 1 基于外腔结构的太赫兹参量辐射源 Table 1 Terahertz parametric source based on extra-cavity configuration

time	crystal	pump pulse width/ns	terahertz energy	peak power	tuning range /THz	reference
2001	MgO:CLN	15.0	0.14 nJ	>100 mW	1.58	[34]
2002	MgO:CLN	15.0	750 pJ@1.44 THz	50 mW	0.6~2.0	[36]
2006	MgO:CLN	25.0	104 pJ@1.46 THz	4.16 mW	0.80~2.74	[26]
2009	MgO:CLN	17.0	6 nJ@1.3~1.6 THz	352 mW	0.93~2.70	[30]
2014	KTA	8.2	627 nJ@4.3 THz	76.46 W	3.59~6.43	[19]
2014	KTP	8.2	336 nJ@5.72 THz	40.98 W	3.17~6.13	[40]
2016	MgO:CLN	10.0	12.9 μJ@1.359 THz	1.29 kW	0.7~2.8	[32]
2019	MgO:SLN	10.0	5.46 μJ@1.79 THz	546 W	1.04~5.15	[15]
2021	KTP	10.0	6.27 μJ@3.33 THz	627 W	2.93~6.21	[21]

表2 基于内腔结构泵浦的太赫兹参量辐射源

Table2 Terahertz parametric source based on intra-cavity configuration

time	crystal	repetition frequency	terahertz energy	peak power	tuning range /THz	reference
2006	MgO:CLN	15 Hz	>5 nJ	>1 W@1.6 THz	1.20~3.05	[41]
2008	MgO:CLN	400 Hz	12 nJ	>10 µW	1~3	[42]
2009	MgO:CLN	65 Hz	>5 nJ	=	1~3	[43]
2016	RTP	3 kHz	5.4 nJ	16.2 μW@3.8 THz	3.10~4.15	[20]
2017	MgO:CLN	5 kHz	-	23.6 µW@1.33 THz	1.05~2.22	[44]
2017	MgO:CLN	3 kHz	-	56.8 μW@1.76 THz	1.46~3.84	[16]
2019	KTP	6 kHz	-	166 μW@5.74 THz	3.19~5.94	[40]
2020	RTP	7 kHz	_	367 μW@3.88 THz	_	[45]

2006年,英国圣安德鲁斯大学 Edwards 等[41] 首次将 Stokes 谐振腔放置在 1 064 nm 激光器内部,实现了 1.2~3.05 THz 调谐输出,泵浦阈值降低至 1 mJ,转换效率接近 50%。该结构产生的太赫兹波线宽小于 100 GHz。2008年,该团队在谐振腔和 Stokes 谐振腔内分别插入标准具,实现线宽为 1 GHz 的太赫兹波输出[42],脉冲重复频率为 400 Hz;次年将单频种子光注入 Stokes 谐振腔,将太赫兹波线宽压窄至 100 MHz[43]。2013年,澳大利亚麦考瑞大学 Lee 等[46]采用长度为 25 mm 的 LN 晶体结合小尺寸高 Q 值谐振腔使泵浦阈值降低,并实现了 1.53~2.82 THz 范围的太赫兹波输出;次年,该团队采用 Nd:GdVO<sub>4</sub>作为增益介质,并在其一端镀介质膜作为谐振腔腔镜,同时采用短腔长的基频腔和 Stokes 腔,通过减小腔损耗实现连续太赫兹波输出[47],最大输出平均功率为 2.3 μW。由于晶体对太赫兹波吸收随频率的增加而增大,为使高频太赫兹波从晶体内部输出,2018年,该团队将 RTP 晶体设计为浅表面出射结构,可实现 3.59~5.98 THz 的间断输出,输出平均功率为 124.7 μW,为太赫兹波实际应用提供了可调谐高功率太赫兹辐射源[48]。但该辐射源线宽较宽(28 GHz),因此该团队采用未镀膜的标准具分别插入基频光谐

振腔和基于 LN 晶体的 Stokes 谐振腔实现线宽压窄。相比于不插入标准具的情况,线宽缩小到原来的 1/10,同时实现输出平均功率为 13.7 μW 的连续太赫兹波输出<sup>[49]</sup>。2020年,山东大学 GAO 等<sup>[40,45]</sup>采用二极管侧面泵浦结构,分别基于 KTP 和 RTP 晶体实现高平均功率的太赫兹波输出。由于侧泵方法具有泵浦功率更大、光束尺寸更大的优点,有利于增大三波互作用区域,实验中分别实现了平均功率为 166 μW(KTP)和 367 μW(RTP)的太赫兹波输出。目前基于内腔结构的调谐方式较为单一,通过旋转整个谐振腔实现调谐。2022年,澳大利亚 Kitzler 等<sup>[50]</sup>将基频腔和 Stokes 谐振腔分别设计为凹凸腔和双凹腔并进行模式匹配,该装置只旋转 Stokes 谐振腔中焦距较长的腔镜即可实现快速调谐。

## 4.4 泵浦参数优化

当高峰值功率的纳秒激光泵浦非线性晶体时,SPS 过程与受激布里渊散射(Stimulated Brillouin Scattering, SBS)过程同时存在,二者互相竞争,抑制太赫兹波的产生效率。2017年,日本理化学研究所报道了泵浦脉冲宽度对太赫兹波参量辐射源的影响<sup>[51]</sup>,如图9所示。结果表明,当泵浦脉宽小于1 ns,即脉宽为声子弛豫时间的1/3时,可有效抑制 SBS 过程,使SPS 过程的转换效率提升3个数量级。因此基于皮秒或亚纳秒激光泵浦的太赫兹参量辐射源可提高太赫兹波的输出性能。2008年,研究人员利用亚纳秒微片 Nd:YAG 泵浦 LN 晶体,并采用连续种子光沿 Stokes 光方向注入,实现了0.9~3 THz 的太赫兹波调谐输出,首次验证了基于 SPS 过程的亚纳秒激光泵浦太赫兹参量辐射源可产生宽调谐的太赫兹波输出<sup>[52]</sup>。该团队接着采用高峰值功率的泵浦光和高平均功率的连续种子光

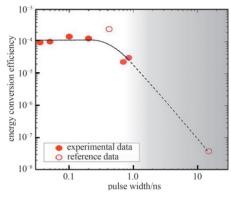


Fig.9 Relationship between pump pulse width and terahertz energy conversion efficiency at 1.9 THz

图 9 1.9 THz 时泵浦脉宽与太赫兹能量转换效率的关系图

实现了峰值功率由百 W 量级提升到 50 kW 量级的太赫兹波输出[53-54]。2018 年,该团队通过将重频从 100 Hz 提高至 100 kHz,实现了高平均功率(30 μW)、高峰值功率(4 W)的太赫兹波输出[55]。级联效应是 SPS 过程常见的现象,天津大学闫超等[56]利用 Stokes 谐振腔实现非同步 Stokes 循环,增强太赫兹波输出能量,在实验中实现峰值功率 1.2 kW 的太赫兹波输出,同时观察到高阶 Stokes 光产生。沈阳自动化研究所 LI 等[57]利用级联效应对太赫兹波放大,得到峰值功率为 1.09 MW 的太赫兹波输出。由于种子注入 TPG需要泵浦能量较高,而 TPO 可有效降低阈值,因此科学家采用外腔增强同步泵浦受激电磁耦子晶体实现高性能太赫兹波输出。日本理化学研究所 Takida等[58]报道了基于皮秒激光器泵浦的同步 TPO 辐射源,该装置可降低泵浦阈值,实现频率为 0.9 THz 的太赫兹波输出。随后在 2013 年基于相似谐振腔结构实现 0.9~3.3 THz 的可调谐太赫兹波输出,同时证明了采用浅表面出射结构比硅棱镜耦合的太赫兹波输出增强数倍[59]。通过谐振腔可实现外腔增强,但需要纳米量级的腔反馈装置。澳大利亚麦考瑞大学 Warrier等[60]提出基于声子模耦合同步泵浦的太赫兹辐射源,通过 1 064 nm 激光激发高阶声子模(487 cn<sup>-1</sup>),产生中心波长为 1 123 nm 的 Stokes 光,利用该 Stokes 光激发电磁耦子(248 cm<sup>-1</sup>)实现重复频率为 80 MHz、最大平均功率为 3.7 μW 的太赫兹波输出,该装置不需要精确控制谐振腔。基于皮秒脉冲泵浦的太赫兹参量辐射源如表 3 所示。

表3 基于皮秒脉冲泵浦的太赫兹参量辐射源 Table3 Terahertz parametric radiation source based on picosecond pulse pumping

time	crystal	pump pulse width/ps	repetition frequency	terahertz energy	peak power	tuning range /THz	energy conversion efficiency	reference
2012	MgO:CLN	420.0	100 Hz	=	>120 W@1.8 THz	1.2~2.8	4.3×10 <sup>-9</sup>	[53]
2013	MgO:CLN	1.5	81.7 MHz	40 nW@2 THz	=	0.9~3.3	$5 \times 10^{-8}$	[59]
2014	MgO:CLN	420.0	100 Hz	5 μJ@1.8 THz	50 kW	0.7~3.0	$1 \times 10^{-6}$	[54]
2016	MgO:CLN	15.0	80 MHz	5.4 μW	4.5 mW	0.51~2.12	$1.08 \times 10^{-6}$	[60]
2019	MgO:CLN	140.0	100 kHz	0.3 nJ@1.8 THz	4 W	0.9~2.9	$6 \times 10^{-6}$	[55]
2019	MgO:CLN	50.0	1 kHz	61.7 nJ	1.234 kW	1.24~1.89	$3.08 \times 10^{-6}$	[55]
2021	MgO:CLN	30.0	5 Hz	32.74 μJ	1.09 MW	2.1	$1.72 \times 10^{-3}$	[57]
2023	MgO:CLN	200.0	25 kHz	0.14 mW @1.77 THz	28 W	1.3~2.5	3.3×10 <sup>-5</sup>	[63]

太赫兹波的输出增益与晶体的拉曼散射截面呈正相关,而拉曼散射截面与泵浦光频率呈正比。因此,采用短波长泵浦可有效提升 SPS 过程的增益。同时,当泵浦光波长改变时,相位匹配曲线发生变化,出射的太赫兹波频率随之变化。2016年,天津大学闫超等[61]提出用中心波长为 532 nm 激光泵浦 KTP 晶体,首次实现了 5.7~13.5 THz 的宽带可调谐间断太赫兹波输出。鉴于 KTP 晶体的相位匹配特性与多电磁耦子体系特性,天津大学

TANG等<sup>[62]</sup>在实验中采用 532 nm 和 1 064 nm 双波长同时泵浦 KTP 晶体,实现了 3.15~11.63 THz 和 1.4~6.03 THz 范围可调的双色太赫兹波输出,且双色太赫兹波能量随不同波长泵浦能量独立增加,双色输出能量互不影响,该研究为多光谱成像提供了有效的解决方案。通常采用中心波长为 1 064 nm 的泵浦源泵浦 LN 晶体,但其在该波长的抗光折变能力较差,易于损坏,因此采用波长更长的激光作为泵浦光可有效提高 LN 晶体的抗光折变能力,如采用 1 324 nm、1.5 μm 泵浦 LN 晶体,可减小对 LN 晶体的损伤<sup>[44,63]</sup>。

### 5 太赫兹辐射源在物质检测中的应用

太赫兹波段覆盖了很多大分子的振动能级和转动能级,且太赫兹波具有低能量的特点,可实现对检测样品的无损检测。在物质材料方面,杂质对材料的微观结构有着重要影响,如化学药品中的同分异构体。目前对有机分子检测常用液相色谱法,但此方法对具有相同分子质量的同分异构体无法进行杂质检测。因此探索一种新型的检测方法对物质的浓度进行测量具有重要意义。2018年,日本理化学研究所 Mohara 等[64]利用太赫兹光谱技术对药片中杂质浓度进行检测。实验过程中采用种子注入式太赫兹参量产生器和太赫兹透射式检测系统对样品进行检测,对样品掺入不同浓度的乙酰氨基进行太赫兹光谱测量,并通过偏最小二乘法模型对乙酰氨基酚浓度进行交叉验证,验证的均方根误差为0.297 wt%。同年,该研究团队采用太赫兹光谱系统对有机晶体中杂质进行定量检测,获得了 L-天冬氨酸单水合物(L-Asn·H<sub>2</sub>O)掺杂 L-天冬氨酸(L-Asp)(0.05~12.5 wt%)的太赫兹光谱;采用最小二乘曲线拟合技术,可检测出的杂质含量低至 500 ppm<sup>[65]</sup>。因此采用太赫兹光谱技术可对物质浓度进行定量检测。

## 6 总结与展望

本文综述了太赫兹参量辐射源的主要研究进展,介绍了目前太赫兹参量辐射源在受激电磁耦子散射晶体、耦合方式、增益提升方面的典型成果以及太赫兹参量辐射源在物质浓度检测领域的典型成果。太赫兹辐射源在物质检测领域具有重要的应用前景,尤其是太赫兹光谱与成像技术可对同分异构体进行检测,弥补了传统检测方式的缺陷。虽然目前太赫兹参量辐射源在许多方面具有很大优势,但仍存在一定的局限性,该类辐射源可从以下几个方面进行突破:

- 1) 目前常用的晶体为 5 mol% MgO:CLN、KTP、KTA、RTP晶体,探索新型晶体,提升晶体电磁耦子的电磁辐射能比例,减小晶体对太赫兹波的吸收系数,是拓宽太赫兹波调谐范围、提升输出能量的有效途径之一。
- 2) 基于LN 晶体的太赫兹参量辐射源输出频率在 3 THz 以下,同时在高频处的信噪比下降严重,因此拓展调谐频率范围、增加高频的太赫兹波输出功率是当前太赫兹辐射源应用所需解决的重点。
- 3) 基于KTP此类晶体的太赫兹参量辐射源采用脉冲种子注入实现了连续调谐输出,但在频率7 THz以上还未实现连续可调谐输出。采用532 nm泵浦波长结合种子注入有望实现连续可调谐输出。
- 4) 太赫兹参量辐射源的稳定性是当前需关注的重点,提升太赫兹参量辐射源的输出功率及稳定性是太赫兹 波成像和光谱应用的关键。
- 5) 压窄太赫兹波的线宽,提高太赫兹光谱分辨力,可解决太赫兹光谱在物质浓度检测中吸收峰重叠的问题, 是太赫兹参量辐射源在物质浓度检测等应用领域的发展方向之一。

#### 参考文献:

- [1] SIEGEL P H. Terahertz technology[J]. IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 2002, 50(3): 910-928. doi: 10.1109/22.989974.
- [2] TONOUCHI M. Cutting-edge terahertz technology[J]. Nature Photonics, 2007,1(2):97-105. doi:10.1038/nphoton.2007.3.
- [3] KAWASE K,SHIKATA J I,ITO H. Terahertz wave parametric source[J]. Journal of Physics D-Applied Physics, 2002,35(3):R1-R14. doi:10.1088/0022-3727/35/3/201.
- [4] MURATE K, KAWASE K. Perspective:terahertz wave parametric generator and its applications[J]. Journal of Applied Physics, 2018,124(16):160901. doi:10.1063/1.5050079.
- [5] LEE A J, SPENCE D J, PASK H M. Terahertz sources based on stimulated polariton scattering[J]. Progress in Quantum Electronics, 2020(71):100254-1-23. doi:10.1016/j.pquantelec.2020.100254.
- [6] ZHONG Kai,SHI Wei,XU Degang, et al. Optically pumped terahertz sources[J]. Science China Technological Sciences, 2017,60 (12):1801-1818. doi:10.1007/s11431-017-9057-3.

- [7] 王泽城,杨忠明,张行愚,等. 太赫兹参量源研究进展[J]. 量子电子学报, 2023,40(2):139-163. (WANG Zecheng, YANG Zhongming, ZHANG Hengyu, et al. Research progress of terahertz parametric sources[J]. Chinese Journal of Quantum Electronics, 2023,40(2):139-163.) doi:10.3969/j.issn.1007-5461.2023.02.001.
- [8] SUSSMEN S S. Tunable light scattering from transverse optical modes in lithium niobate[D]. California, USA: Stanford University, 1970.
- [9] FURUKAWA Y, SATO M, NITANDA F, et al. Growth and characterization of MgO-doped LiNbO<sub>3</sub> for electro-optic devices[J]. Journal of Crystal Growth, 1990,99(4):832–836. doi:10.1016/S0022-0248(08)80035-8.
- [10] NAKAMURA M, HIGUCHI S, TAKEKAWA S, et al. Optical damage resistance and refractive indices in near-stoichiometric MgO-doped LiNbO<sub>3</sub>[J]. Japanese Journal of Applied Physics, 2002(41):1A. doi:10.1143/JJAP.41.L49.
- [11] SHIKATA J, KAWASE K, KARINO K, et al. Tunable terahertz-wave parametric oscillators using LiNbO<sub>3</sub> and MgO: LiNbO<sub>3</sub> crystals[J]. IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 2000,48(4):653-661. doi:10.1109/22.841956.
- [12] KEN-ICHI K,JUN-ICHI S,KODO K,et al. Terahertz-wave parametric generation characteristics of MgO:LiNbO<sub>3</sub>[J]. Electronics and Communications in Japan(Part II:Electronics), 2002,85(4):22-29. doi:10.1002/ecjb.1101.
- [13] MURATE L, HAYASHI S, KAWASE K. Expansion of the tuning range of injection-seeded terahertz-wave parametric generator up to 5 THz[J]. Applied Physics Express, 2016,9(8):082401. doi:10.7567/APEX.9.082401.
- [14] 徐德刚,李长昭,王与烨,等. 基于 MgO:SLN 晶体的环形腔太赫兹参量振荡器[J]. 光学学报, 2018,38(11):280-284. (XU Degang, LI Changzhao, WANG Yuye, et al. Ring-cavity terahertz parametric oscillator based on MgO:SLN crystals[J]. Acta Optica Sinica, 2018,38(11):280-284.) doi:10.3788/AOS201838.1119001.
- [15] TANG Longhuang, XU Degang, WANG Yuye, et al. Injection pulse-seeded terahertz-wave parametric generator with gain enhancement in wide frequency range[J]. Optics Express, 2019,27(16):22808-22818. doi:10.1364/OE.27.022808.
- [16] TANG Longhuang, XU Degang, WANG Yuye, et al. Efficient ring-cavity terahertz parametric oscillator with pump recycling technique[J]. IEEE Photonics Journal, 2019,11(1):1-9. doi:10.1109/JPHOT.2019.2893188.
- [17] XU Liwen. Raman scattering of polaritons in a KTiOPO<sub>4</sub> crystal[J]. Chinese Physics Letters, 1990,7(10):469.
- [18] WANG Weitao, CONG Zhenhua, CHEN Xiaohan, et al. Terahertz parametric oscillator based on KTiOPO 4 crystal[J]. Optics Letters, 2014,39(13):3706-3709. doi:10.1364/OL.39.003706.
- [19] WANG Weitao, CONG Zhenhua, LIU Zhaojun, et al. THz-wave generation via stimulated polariton scattering in KTiOAsO<sub>4</sub> crystal[J]. Optics Express, 2014,22(14):17092-17098. doi:10.1364/OE.22.017092.
- [20] ORTEGA T A, PASK H M, SPENCE D J, et al. Stimulated polariton scattering in an intracavity KTiOPO<sub>4</sub> crystal generating frequency-tunable THz output[J]. Optics Express, 2016,24(10):10254-10264. doi:10.1364/OE.24.010254.
- [21] CHEN Kai, TANG Longhuang, XU Degang, et al. Continuously tunable and energy-enhanced injection pulse-seeded terahertz parametric generator based on KTP crystal[J]. ACS Photonics, 2021,8(11):3141-3149. doi:10.1021/acsphotonics.1c00284.
- [22] YARBOROUGH J, SUSSMAN S, EFFICIENT P H. Efficient, tunable optical emission from LiNbO<sub>3</sub> without a resonator[J]. Applied Physics Letters, 1969,15(3):102–105. doi:10.1063/1.1652910.
- [23] KAWASE K,SATO M,TANIUCHI T,et al. Coherent tunable THz-wave generation from LiNbO<sub>3</sub> with monolithic grating coupler[J]. Applied Physics Letters, 1996,68(18):2483–2485.
- [24] KAWASE K,SATO M,NAKAMURA K,et al. Unidirectional radiation of widely tunable THz wave using a prism coupler under noncollinear phase matching condition[J]. Applied Physics Letters, 1997,71(6):753-755. doi:10.1063/1.119635.
- [25] KAWASE K, SHIKATA J, MINAMIDE H, et al. Arrayed silicon prism coupler for a terahertz-wave parametric oscillator[J]. Applied Optics, 2001,40(9):1423-1426. doi:10.1364/ao.40.001423.
- [26] IKARI T, ZHANG X B, MINAMIDE H, et al. THz-wave parametric oscillator with a surface-emitted configuration[J]. Optics Express, 2006,14(4):1604-1610. doi:10.1364/oe.14.001604.
- [27] ORTEGA T A,PASK H M,SPENCE D J,et al. THz polariton laser using an intracavity Mg:LiNbO<sub>3</sub> crystal with protective Teflon coating[J]. Optics Express, 2017,25(4):3991–3999. doi:10.1364/OE.25.003991.
- [28] WANG Weitao, ZHANG Xingyu, WANG Qingpu, et al. Multiple-beam output of a surface-emitted terahertz-wave parametric oscillator by using a slab MgO:LiNbO<sub>3</sub> crystal[J]. Optics Letters, 2014,39(4):754-757. doi:10.1364/OL.39.000754.
- [29] IMAI K, KAWASE K, ITO H. A frequency-agile terahertz-wave parametric oscillator[J]. Optics Express, 2001,8(13):699-704. doi:10.1364/oe.8.000699.
- [30] MINAMIDE H,IKARI T,ITO H. Frequency-agile terahertz-wave parametric oscillator in a ring-cavity configuration[J]. Review of Scientific Instruments, 2009,80(12):123104. doi:10.1063/1.3271039.

- [31] SUN Bo, LI Sanxing, LIU Jinsong, et al. Terahertz-wave parametric oscillator with a misalignment-resistant tuning cavity[J]. Optics Letters, 2011,36(10):1845-1847. doi:10.1364/OL.36.001845.
- [32] YANG Zhen, WANG Yuye, XU Degang, et al. High-energy terahertz wave parametric oscillator with a surface-emitted ring-cavity configuration[J]. Optics Letters, 2016,41(10):2262-2265. doi:10.1364/OL.41.002262.
- [33] WU D H,IKARI T. Enhancement of the output power of a terahertz parametric oscillator with recycled pump beam[J]. Applied Physics Letters, 2009,95(14):141105-1-3. doi:10.1063/1.3240871.
- [34] IMAI K,KAWASE K,SHIKATA J,et al. Injection-seeded terahertz-wave parametric oscillator[J]. Applied Physics Letters, 2001, 78(8):1026-1028. doi:10.1063/1.1350420
- [35] KAWASE K,SHIKATA J I,IMAI K,et al. Transform-limited,narrow-linewidth,terahertz-wave parametric generator[J]. Applied Physics Letters, 2001,78(19):2819-2821. doi:10.1063/1.1370988.
- [36] IMAI K, KAWASE K, MINAMIDE H, et al. Achromatically injection-seeded terahertz-wave parametric generator[J]. Optics Letters, 2002,27(24):2173-2175. doi:10.1364/ol.27.002173.
- [37] GUO Ruixiang, AKIYAMA K, MINAMIDE H, et al. All-solid-state, narrow linewidth, wavelength-agile terahertz-wave generator[J]. Applied Physics Letters, 2006, 88(9):091120. doi:10.1063/1.2181196.
- [38] TANG Guanqi, CONG Zhehua, QIN Zengguang, et al. Energy scaling of terahertz-wave parametric sources[J]. Optics Express, 2015,23(4):4144-4152. doi:10.1364/OE.23.004144.
- [39] HAYASHI S, MINAMIDE H, IKARI T, et al. Output power enhancement of a palmtop terahertz-wave parametric generator[J]. Applied Optics, 2007,46(1):117-123. doi:10.1364/ao.46.000117.
- [40] GAO Feilong, ZHANG Xingyu, CONG Zhenhua, et al. Enhancement of intracavity-pumped terahertz parametric oscillator power by adopting diode-side pumped configuration based on KTiOPO<sub>4</sub> crystal[J]. Crystals, 2019,9(12):666.
- [41] EDWARDS T, WALSH D, SPURR M, et al. Compact source of continuously and widely-tunable terahertz radiation[J]. Optics Express, 2006,14(4):1582-1589. doi:10.1364/oe.14.001582.
- [42] STOTHARD D,EDWARDS T,WALSH D,et al. Line-narrowed,compact,and coherent source of widely tunable terahertz radiation[J]. Applied Physics Letters, 2008,92(14):3-5. doi:10.1063/1.2907489.
- [43] WALSH D,STOTHARD D,EDWARDS T,et al. Injection-seeded intracavity terahertz optical parametric oscillator[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2009,26(6):1196.
- [44] LEE A J, SPENCE D J, PASK H M. Tunable THz polariton laser based on 1 342 nm wavelength for enhanced terahertz wave extraction[J]. Optics Letters, 2017, 42(14):2691–2694. doi:10.1364/OL.42.002691.
- [45] GAO Feilong, ZHANG Xingyu, CONG Zhenhua, et al. High average power diode-side-pumped intracavity terahertz parametric source based on stimulated polariton scattering in RbTiOPO<sub>4</sub> crystal[J]. IEEE Photonics Journal, 2020, 12(2):1-9. doi:10.1109/JPHOT.2020.2981527.
- [46] LEE A H Y,PASK H. Frequency-tunable THz source based on stimulated polariton scattering in Mg:LiNbO<sub>3</sub>[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 2013,49(3):357-364.
- [47] LEE A,PASK H. Continuous wave, frequency-tunable terahertz laser radiation generated via stimulated polariton scattering[J]. Optics Letters, 2014,39(3):442-445. doi:10.1364/ol.39.000442.
- [48] ORTEGA T A,PASK H M,SPENCE D J,et al. Tunable 3~6 THz polariton laser exceeding 0.1 mW average output power based on crystalline RbTiOPO<sub>4</sub>[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2018, 24(5): 1-6. doi: 10.1109/JSTQE. 2018.2810380.
- [49] ZHENG Y M, LEE ANDREW, SPENCE D, et al. Linewidth-narrowing of a continuous wave terahertz polariton laser using an intracavity etalon[J]. Optics Letters, 2020,45(1):157-160. doi:10.1364/OL.45.000157.
- [50] KITZLER O,JOSE A,LEE A,et al. Cavity design with single-mirror THz frequency tuning for polariton lasers[J]. Optics Letters, 2022,47(14):3391-3394. doi:10.1364/OL.465375.
- [51] NAWATA K,HAYASHI S,ISHIZUKI H,et al. Effective terahertz wave parametric generation depending on the pump pulse width using a LiNbO<sub>3</sub> crystal[J]. IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology, 2017,7(5):617-620. doi:10.1109/TTHZ. 2017.2725479.
- [52] HAYASHI S, SHIBUYA T, SAKAI H, et al. Tunability enhancement of a terahertz-wave parametric generator pumped by a microchip Nd:YAG laser[J]. Applied Optics, 2009,48(15):2899-2902. doi:10.1364/ao.48.002899.
- [53] HAYASHI S, NAWATA K, SAKAI H, et al. High-power, single-longitudinal-mode terahertz-wave generation pumped by a microchip Nd:YAG laser[J]. Optics Express, 2012,20(3):2881-2886. doi:10.1364/OE.20.002881.

- [54] MINAMIDE H, HAYASHI S, NAWATA K, et al. Kilowatt-peak terahertz-wave generation and sub-femtojoule terahertz-wave pulse detection based on nonlinear optical wavelength-conversion at room temperature[J]. Journal of Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, 2014,35(1):25-37. doi:10.1007/s10762-013-0041-0.
- [55] MORIGUCHI Y, TOKIZANE Y, TAKIDA Y, et al. High-average and high-peak output-power terahertz-wave generation by optical parametric down-conversion in MgO:LiNbO<sub>3</sub>[J]. Applied Physics Letters, 2018,113(12):121101-121103.
- [56] YAN Chao, XU Degang, WANG Yuye, et al. Enhanced terahertz wave generation via stokes wave recycling in non-synchronously picosecond pulse pumped terahertz source[J]. IEEE Photonics Journal, 2019,11(5):1-8. doi:10.1109/JPHOT.2019.2934488.
- [57] LI Weifan, QI Feng, LIU Pengxiang, et al. Cascaded effect in a high-peak-power terahertz-wave parametric generator [J]. Optics Letters, 2022,47(1):178–181. doi:10.1364/OL.441786.
- [58] TAKIDA Y, MAEDA S, OHIRA T, et al. Noncascading THz-wave parametric oscillator synchronously pumped by mode-locked picosecond Ti: sapphire laser in doubly-resonant external cavity[J]. Optics Communications, 2011, 284(19): 4663–4666. doi: 10.1016/j.optcom.2011.04.072.
- [59] TAKIDA Y, OHIRA T, TADOKORO Y, et al. Tunable picosecond terahertz-wave parametric oscillators based on noncollinear pump-enhanced signal-resonant cavity[J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2013, 19(1):8500307. doi: 10.1109/JSTQE.2012.2206801.
- [60] WARRIER A M, LI R, LIN J P, et al. Tunable terahertz generation in the picosecond regime from the stimulated polariton scattering in a LiNbO<sub>3</sub> crystal[J]. Optics Letters, 2016,41(18):4409-4412. doi:10.1364/OL.41.004409.
- [61] YAN Chao, WANG Yuye, XU Degang, et al. Green laser induced terahertz tuning range expanding in KTiOPO<sub>4</sub> terahertz parametric oscillator[J]. Applied Physics Letters, 2016(108):011107.
- [62] TANG Longhuang, XU Degang, WANG Yuye, et al. Tunable dual—color terahertz wave parametric oscillator based on KTP crystal[J]. Optics Letters, 2019,44(23):5675–5678. doi:10.1364/OL.44.005675.
- [63] NISHIDA M, NOTAKE T, TAKIDA Y, et al. High-repetition-rate injection-seeded terahertz-wave parametric generation pumped by a 1.5 µm sub-nanosecond laser[J]. Applied Physics Letters, 2024,124(12):121105. doi:10.1063/5.0192587.
- [64] MOHARA M,SHIMURA K,AIKO K,et al. Terahertz spectroscopy using an injection-seeded terahertz parametric generator for quantitative analysis and inspection of over-the-counter medicine tablets[C]// Proceedings of Terahertz, RF, Millimeter, and Submillimeter-Wave Technology and Applications. San Francisco, California, United States: SPIE, 2018: 1053121. doi:10.1117/ 12.2288029.
- [65] SASAKI T, SAKAMOTO T, OTSUKA M. Detection of impurities in organic crystals by high-accuracy terahertz absorption spectroscopy[J]. Analytical Chemistry, 2018,90(3):1677–1682. doi:10.1021/acs.analchem.7b03220.

#### 作者简介:

张敬喜(1999-), 男,在读硕士研究生,主要研究方向为太赫兹光学参量辐射源.email:jingxizhang@tju.edu.cn.

**王与烨**(1984-), 女,博士,教授,主要研究方向为全固态激光器及非线性光学频率变换技术、太赫兹光子学源及其生物医学光谱成像技术.

徐炳烽(2000-), 男, 在读硕士研究生, 主要研究方向为太赫兹光子学辐射源.

马鸿儒(2000-), 男,在读硕士研究生,主要研究方向为太赫兹参量上转换探测技术.

刘紫鲲(2000-),男,在读硕士研究生,主要研究方向为太赫兹参量上转换探测技术.

徐德刚(1974-), 男, 博士, 教授, 博士生导师, 主要从事激光与太赫兹光子学、激光雷达探测感知、太赫兹光谱成像技术以及海洋光纤传感技术等研究工作.

姚建铨(1939-), 男, 博士, 中国科学院院士, 主要研究方向为激光与非线性光学频率变换技术.