

# 大能量磷酸钛氧钾太赫兹参量源

贾晨阳<sup>1</sup>, 张行愚<sup>1\*</sup>, 丛振华<sup>1</sup>, 秦增光<sup>1</sup>, 刘兆军<sup>1</sup>,  
陈晓寒<sup>1</sup>, 臧婕<sup>1</sup>, 李圆<sup>1</sup>, 高飞龙<sup>1</sup>, 焦月<sup>1</sup>, 王伟涛<sup>2</sup>, 张少军<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 山东大学信息科学与工程学院山东省激光技术与应用重点实验室, 山东 青岛 266237;

<sup>2</sup> 山东省科学院激光研究所, 山东 济南 250014;

<sup>3</sup> 山东大学晶体材料国家重点实验室, 山东 济南 250100

**摘要** 使用磷酸钛氧钾(KTiOPO<sub>4</sub>, KTP)晶体, 采用斯托克斯参量振荡器与太赫兹波表面垂直出射的斯托克斯参量放大器相结合的实验方案, 获得了大能量的太赫兹波输出。抽运源是调 Q 脉冲激光器, 输出波长为 1064.2 nm, 脉宽为 7.5 ns, 脉冲重复频率为 1 Hz。斯托克斯光波长为 1086.2 nm, 抽运光与斯托克斯光的夹角为 4.4°, 太赫兹波频率为 5.7 THz。抽运光路上的延时装置可以保证抽运光脉冲与待放大斯托克斯光脉冲有很好的时间重合性。当抽运光脉冲能量为 770 mJ、待放大斯托克斯光脉冲能量为 16.8 mJ 时, 放大后斯托克斯光脉冲能量为 185.4 mJ, 太赫兹波脉冲能量最大为 6.4 μJ。

**关键词** 太赫兹技术; 太赫兹波; 受激电磁耦子散射; 磷酸钛氧钾晶体

中图分类号 O437.3

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201946.0614027

## Large-Pulse-Energy Terahertz Parametric Source Based on KTiOPO<sub>4</sub> Crystal

Jia Chenyang<sup>1</sup>, Zhang Xingyu<sup>1\*</sup>, Cong Zhenhua<sup>1</sup>, Qin Zengguang<sup>1</sup>, Liu Zhaojun<sup>1</sup>, Chen Xiaohan<sup>1</sup>,  
Zang Jie<sup>1</sup>, Li Yuan<sup>1</sup>, Gao Feilong<sup>1</sup>, Jiao Yue<sup>1</sup>, Wang Weitao<sup>2</sup>, Zhang Shaojun<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Shandong Provincial Key Laboratory of Laser Technology and Application, School of Information Science and Engineering, Shandong University, Qingdao, Shandong 266237, China;

<sup>2</sup> Laser Institute of Shandong Academy of Sciences, Jinan, Shandong 250014, China;

<sup>3</sup> State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Jinan, Shandong 250100, China

**Abstract** In this study, the high-energy terahertz-wave pulses were generated using a potassium titanyl phosphate (KTiOPO<sub>4</sub>, KTP) crystal and an experimental scheme that combines a Stokes parametric oscillator and a Stokes parametric amplifier involving the vertical surface emission of terahertz waves. The pump source was a Q-switched laser with an output wavelength of 1064.2 nm, a pulse width of 7.5 ns, and a pulse repetition rate of 1 Hz. The Stokes light wavelength is 1086.2 nm, the angle between the pump and Stokes beams is 4.4°, and the terahertz wave frequency is 5.7 THz. The time-delay device on the pump-light path can ensure that the pump light pulse has a good time coincidence with the Stokes light pulse to be amplified. When the pump light pulse energy is 770 mJ and the Stokes light pulse energy to be amplified is 16.8 mJ, the amplified Stokes light pulse energy is 185.4 mJ and the maximum terahertz wave pulse energy is 6.4 μJ.

**Key words** terahertz technology; terahertz wave; stimulated polariton scattering; potassium titanyl phosphate crystal

**OCIS codes** 190.4410; 140.3580; 190.5890; 190.4400

## 1 引言

太赫兹波是指频率介于 0.1~10 THz 之间的

电磁辐射波, 在生物医学、材料科学、安全监测、通信和国防等领域有着广泛的应用前景<sup>[1-5]</sup>。太赫兹参量源是重要的太赫兹辐射源之一, 具有窄线宽、可连

收稿日期: 2018-11-19; 修回日期: 2018-12-26; 录用日期: 2019-01-04

基金项目: 国家自然科学基金(61775122, 61475087, 61605103)、山东省重点研发计划(2017CXGC0809, 2017GGX10103)、山东省自然科学基金(ZR2014FM024)

\* E-mail: xyz@sdu.edu.cn

续调谐、室温工作、峰值功率高和相干性好等诸多优点。然而,其产生的太赫兹波脉冲能量较低。

太赫兹参量源的物理基础是受激电磁耦子散射<sup>[6]</sup>,即一个抽运光光子转换为一个斯托克斯光光子和一个太赫兹波光子,在转换过程中满足能量守恒和动量守恒。由于太赫兹波在晶体中的折射率较大,故只能实现非共线相位匹配。

太赫兹参量源的工作方式包括:太赫兹参量产生器、太赫兹参量振荡器、种子注入式太赫兹参量产生器,以及斯托克斯参量振荡器与斯托克斯参量放大器相结合的方式<sup>[7]</sup>。在第4种方式中,斯托克斯参量振荡器的作用是产生待放大的斯托克斯光脉冲,斯托克斯参量放大器的作用是在放大入射斯托克斯光脉冲能量的同时,通过受激电磁耦子散射得到太赫兹脉冲。在该方式中,在保证抽运光能量密度小于非线性晶体损伤阈值的情况下,抽运光束的光斑尺寸不受限制,因而抽运脉冲能量不受限制,通过对待放大斯托克斯脉冲进行扩束,可以实现很好的抽运光束与斯托克斯光束的空间重合性;抽运光路上的延时装置可以保证抽运光脉冲与待放大斯托克斯光脉冲有很好的时间重合性;该方式是获得大能量可调谐太赫兹脉冲的重要手段。

传统的太赫兹参量源非线性晶体是铌酸锂(LiNbO<sub>3</sub>,LN)晶体<sup>[8-15]</sup>。近年来发现磷酸钛氧钾(KTiOPO<sub>4</sub>,KTP)、砷酸钛氧钾(KTiOAsO<sub>4</sub>,KTA)和磷酸钛氧铷(RbTiOPO<sub>4</sub>,RTP)等非线性晶体也适用于太赫兹参量源<sup>[16-23]</sup>。其中KTiOPO<sub>4</sub>晶体具有生长技术成熟、晶体光学质量好和损伤阈值高的优良特性,其产生的太赫兹波段(主要为3.3~6.5 THz)与LiNbO<sub>3</sub>晶体产生的太赫兹波段

(主要为0.9~3.1 THz)不同。已报道的KTiOPO<sub>4</sub>太赫兹参量源都是太赫兹参量产生器和太赫兹参量振荡器这两种工作方式<sup>[16-19]</sup>。因此,利用斯托克斯参量振荡器与斯托克斯参量放大器相结合的方式,探索KTiOPO<sub>4</sub>晶体在获得大能量太赫兹脉冲方面的潜力是一项有意义的工作。

本文采用斯托克斯参量振荡器与斯托克斯参量放大器相结合的方式,探索了KTiOPO<sub>4</sub>晶体在获得大能量太赫兹脉冲方面的潜力,太赫兹波输出采用垂直晶体表面发射<sup>[24-26]</sup>的方式。实验结果表明,当抽运光脉冲能量为770 mJ,待放大的斯托克斯光脉冲能量为16.8 mJ,采用最佳延迟1.7 ns时,放大后斯托克斯光脉冲能量为185.4 mJ,最大太赫兹波脉冲能量为6.4 μJ。与已报道的KTiOPO<sub>4</sub>太赫兹参量源获得的最大太赫兹脉冲能量相比(文献[16]中所得结果为0.336 μJ,文献[17]中所得结果为1.6 μJ)有大幅提高。

## 2 实验装置

斯托克斯参量振荡器与太赫兹波表面垂直出射的斯托克斯参量放大器相结合的实验装置如图1所示。实验使用了两块KTiOPO<sub>4</sub>晶体。其中,长条状的KTiOPO<sub>4</sub>晶体在斯托克斯参量振荡器中使用,其尺寸为33 mm×6 mm×6 mm;等腰梯形的KTiOPO<sub>4</sub>晶体在太赫兹波表面垂直出射的斯托克斯参量放大器中使用,其在x-y平面上的尺寸如图2所示,其z方向长度为16.0 mm。抽运光的入射方向大致沿着晶体的x方向,抽运光的偏振方向与晶体z方向保持一致,晶体入射面和出射面均镀有1060.0~1100.0 nm增透膜。

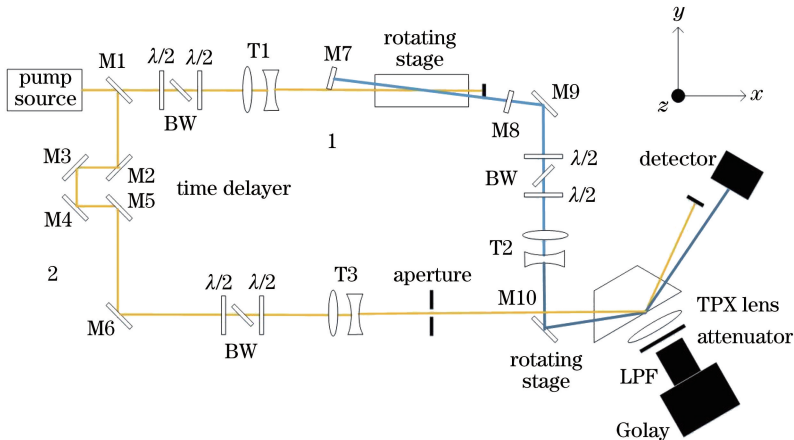


图1 实验装置示意图

Fig. 1 Schematic of experimental setup

实验采用多纵模调 Q 的 Nd:YAG 激光器作为抽运源。抽运光是平顶光,光斑直径为 6.0 mm,中心波长为 1064.2 nm,脉宽为 7.5 ns,脉冲重复频率为 1.0 Hz,其偏振方向与晶体  $z$  方向保持一致。如图 1 所示,分光镜 M1 将抽运光分为两束,分光镜 M1 的分光比(即第一束与第二束抽云光的能量比)约为 3:7。

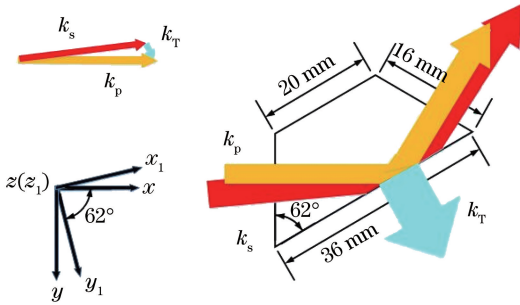


图 2 斯托克斯参量放大器中使用的 KTiOPO<sub>4</sub> 晶体  
Fig. 2 KTiOPO<sub>4</sub> crystal used in Stokes parametric amplifier

第一束抽运光经过一个能量调节器和望远镜系统 T1,进入斯托克斯参量振荡器作为抽运光,产生的待放大的斯托克斯光经过另一个能量调节器和望远镜系统 T2 后,进入斯托克斯参量放大器。斯托克斯参量振荡器中抽运光的光斑大小为 3.0 mm。能量调节器由两个半波片和一个布儒斯特片组成。第一个能量调节器用来调节抽运光脉冲能量并且保证抽运光的偏振方向平行于晶体  $z$  方向。第二个能量调节器用来调节待放大的斯托克斯光脉冲能量。比例为 2:1 的望远镜系统 T1 用来缩减斯托克斯参量振荡器的抽运光束尺寸。斯托克斯参量振荡器放置在一个由步进电机控制的旋转平台上,通过控制旋转平台的角度来控制抽运光与斯托克斯光的夹角。斯托克斯光谱腔腔长约为 130.0 mm,后腔镜 M7 镀有 1060.0~1100.0 nm 高反膜(反射率在 99.8% 以上),输出镜 M8 镀有 1060.0~1100.0 nm 部分透射膜(透射率约为 60%)。比例为 1:3 的望远镜系统 T2 用来放大待放大的斯托克斯光束尺寸,使斯托克斯光束尺寸大于抽运光束,从而获得大的有效重合体积。

第二束抽运光依次经过延时装置、能量调节器、望远镜系统 T3 和光阑,然后入射到斯托克斯参量放大器中。延时装置由 4 个全反镜(M2、M3、M4 和 M5)组成,其主要作用是调整斯托克斯参量放大器中抽运光脉冲与斯托克斯光脉冲的时间重合;能量调节器用来调节第二束抽运光脉冲能量并且保证抽

运光的偏振方向平行于晶体  $z$  方向;望远镜系统 T3 和光阑用来调节入射到斯托克斯参量放大器中抽运光的光斑尺寸。斯托克斯参量放大器中抽运光的光斑大小为 8.0 mm。

在实验过程中,抽运光与斯托克斯光的夹角固定在 4.4°,抽运光和斯托克斯光的波长分别为 1064.2 nm 和 1086.2 nm,相应的太赫兹波长为 52.6  $\mu$ m,频率为 5.7 THz。实验中使用能量探头(J-50MB-YAG, Coherent Inc, 美国)和能量计(EPM2000, Coherent Inc, 美国)来测量抽运光和斯托克斯光脉冲能量。太赫兹波的测量使用 4-甲基戊烯聚合物(TPX)棱镜、太赫兹衰减器和连接到示波器(Tektronix DPO 4104 B, 1 GHz, 8 GSa/s)上的高莱探测器(GC-1D, TYDEX, 俄罗斯)。TPX 棱镜用来聚焦大光斑尺寸的太赫兹波光束。太赫兹衰减器用来衰减太赫兹波脉冲能量,以免击坏高莱探测器。太赫兹低通滤波器(LFP14.3-47, TYDEX, 俄罗斯)用来阻挡散射的抽运光和斯托克斯光,低通滤波器在太赫兹波段的透射率约为 29%。

### 3 实验结果与分析

为了获得大能量的太赫兹波脉冲,实验中首先调节待放大的斯托克斯光脉冲能量,使其达到最大值,然后通过提高抽运光能量和调节延时来提高太赫兹波输出能量。

在斯托克斯参量振荡器中,不同抽运光能量下的斯托克斯光输出能量如图 3 所示。

斯托克斯参量振荡器中的抽运光光斑大小为 3.0 mm,从图 3 中可以看出,当光斑大小保持不变时,抽运光能量越大,输出的斯托克斯光能量就越大。

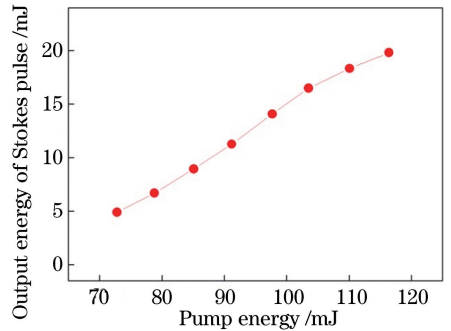


图 3 斯托克斯参量振荡器中不同抽运光能量下的斯托克斯光输出能量

Fig. 3 Output energy of Stokes light in Stokes parametric oscillator versus pump light energy

实验在抽运光能量为 770.0 mJ、待放大的斯托克斯光脉冲能量为 16.8 mJ 的条件下,测量了不同延时对放大后斯托克斯光输出能量的影响。图 4 为放大后斯托克斯光输出能量随延时的变化曲线。

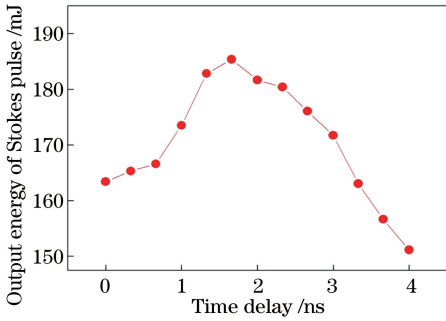


图 4 斯托克斯参量放大器中斯托克斯光输出能量随延时的变化曲线

Fig. 4 Output energy of Stokes light in Stokes parametric amplifier versus time delay

如图 4 所示,随着延时的不断增大,放大后斯托克斯光输出能量先增大后减小;当延时为 1.7 ns 时,

斯托克斯光输出能量达到最大值。这是因为在延时装置中,随着延时的增大,抽运光脉冲与斯托克斯光脉冲之间的时间间隔会逐渐减小,直到完全重合,而后逐渐增大。当延时为 1.7 ns 时,抽运光脉冲与斯托克斯光脉冲完全重合,放大后斯托克斯光输出能量最高为 185.4 mJ。

图 5 为不同延时下抽运光脉冲和斯托克斯光脉冲的波形图。当待放大的斯托克斯光脉冲能量为 16.8 mJ、延时为 1.7 ns 时,斯托克斯参量放大器中,放大后斯托克斯光输出能量随抽运光能量的变化曲线如图 6 所示。

在受激电磁耦子散射过程中,一个抽运光光子转换为一个斯托克斯光光子和一个太赫兹波光子,原则上讲:当斯托克斯光脉冲能量达到最大值时,太赫兹波能量也在最大值附近。当延时为 1.7 ns 时,太赫兹波脉冲能量随抽运光能量的变化曲线如图 7 所示。可以看出,当抽运光能量为 770.0 mJ 时,太赫兹波脉冲能量最大为 6.4  $\mu$ J。

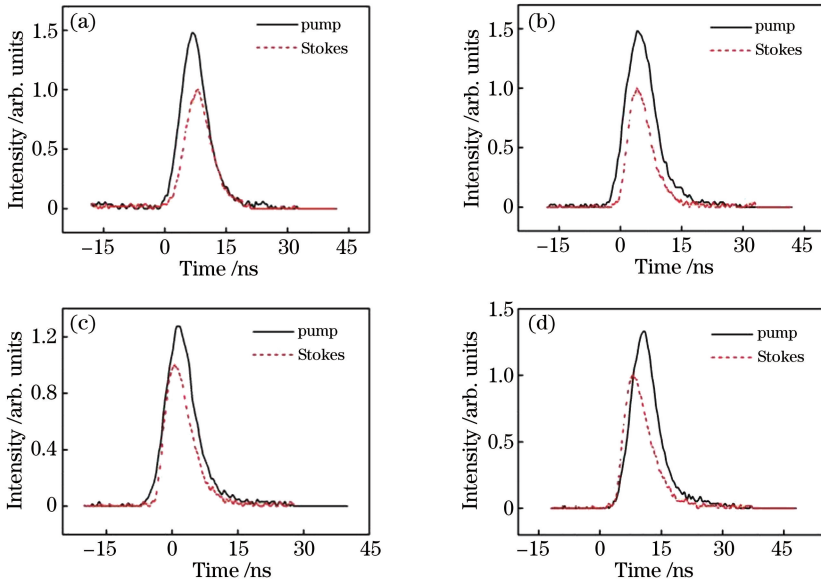


图 5 不同延时下抽运光脉冲和斯托克斯光脉冲的波形图。(a) 0 ns;(b) 1.7 ns;(c) 2.7 ns;(d) 4.0 ns

Fig. 5 Waveforms of pump light pulses and Stokes light pulses for different time delays.

(a) 0 ns; (b) 1.7 ns; (c) 2.7 ns; (d) 4.0 ns

图 8 所示为斯托克斯参量放大器中抽运光脉冲和剩余抽运光脉冲的波形图,可以看出,剩余抽运光脉冲出现了明显凹陷,表明相当一部分能量通过受激电磁耦子散射过程转化成了斯托克斯光和太赫兹波能量。需要说明的是:脉冲形状的采集使用了两个独立的硅光电探测器,一个采集晶体前表面的抽运光,另一个采集通过晶体后的剩余抽运光。

## 4 结 论

产生的太赫兹波能量较低一直是太赫兹参量源亟待解决的问题之一。本文将斯托克斯参量振荡器与太赫兹波表面垂直出射的斯托克斯参量放大器相结合的实验方案用于  $\text{KTiOPO}_4$  晶体,获得了大能量太赫兹波脉冲输出。实验获得的太赫兹波脉冲能



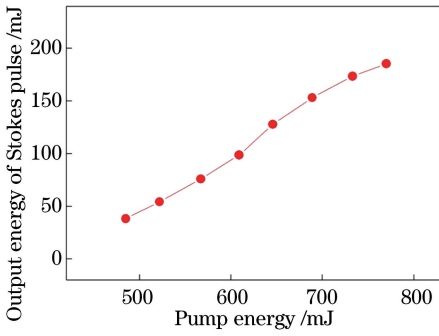


图 6 斯托克斯参量放大器中斯托克斯光输出能量随抽运光能量的变化曲线

Fig. 6 Output energy of Stokes light in Stokes parametric amplifier versus pump light energy

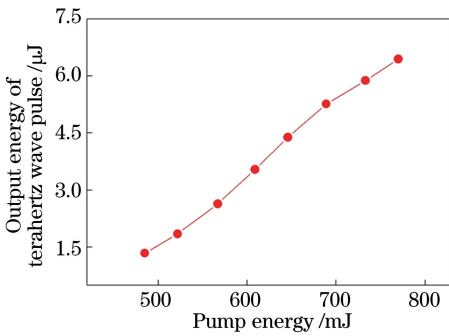


图 7 斯托克斯参量放大器中太赫兹波脉冲能量随抽运光能量的变化曲线

Fig. 7 Terahertz wave pulse energy in Stokes parametric amplifier versus pump light energy

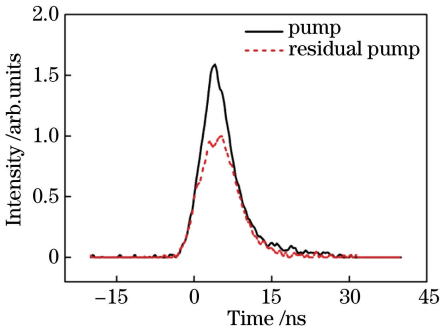


图 8 抽运光脉冲和剩余抽运光脉冲的波形图

Fig. 8 Waveforms of pump light pulse and residual pump light pulse

量最大值为  $6.4 \mu\text{J}$ , 与已报道的  $\text{KTiOPO}_4$  太赫兹参量源获得的太赫兹波脉冲能量相比, 有了大幅提高。实验结果表明, 该方法确实是获得高脉冲能量太赫兹波的行之有效的途径之一。值得一提的是, 该方案的抽运光束尺寸不受限制, 因而可以通过不断提高抽运光的能量和光束尺寸来获得更强的太赫兹波脉冲输出。

## 参 考 文 献

- [1] Tonouchi M. Cutting-edge terahertz technology[J]. Nature Photonics, 2007, 1(2): 97-105.
- [2] Li W J, Wang T Y, Zhou Y, *et al.* Terahertz non-destructive inspection of air defect within adhesive layers of multi-layer bonded structure[J]. Acta Optica Sinica, 2017, 37(1): 0111002.  
李文军, 王天一, 周宇, 等. 多层胶接结构胶层空气缺陷的太赫兹无损检测[J]. 光学学报, 2017, 37(1): 0111002.
- [3] Zhang W T, Wang S Y, Zhan P P, *et al.* Method of identifying red wood based on terahertz time-domain spectroscopy[J]. Acta Optica Sinica, 2017, 37(2): 0230006.  
张文涛, 王思远, 占平平, 等. 基于太赫兹时域光谱技术的红木检测方法[J]. 光学学报, 2017, 37(2): 0230006.
- [4] Li M Q, Tan Z Y, Qiu F C, *et al.* Fast reflective scanning imaging based on terahertz quantum-cascade laser[J]. Acta Optica Sinica, 2017, 37(6): 0611004.  
李孟奇, 谭智勇, 邱付成, 等. 基于太赫兹量子级联激光器的反射式快速扫描成像[J]. 光学学报, 2017, 37(6): 0611004.
- [5] Li N, Bai Y, Liu P. Ellipticity characteristic of terahertz radiation source generated from vacuum jet target[J]. Acta Optica Sinica, 2017, 37(3): 0326002.  
李娜, 白亚, 刘鹏. 真空喷气靶太赫兹辐射源椭圆度特性[J]. 光学学报, 2017, 37(3): 0326002.
- [6] Sun B, Yao J Q. Generation of terahertz wave based on optical methods[J]. Chinese Journal of Lasers, 2006, 33(10): 1349-1359.  
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.
- [7] Tang G Q, Cong Z H, Qin Z G, *et al.* Energy scaling of terahertz-wave parametric sources[J]. Optics Express, 2015, 23(4): 4144-4152.
- [8] Hayashi S, Nawata K, Taira T, *et al.* Ultrabright continuously tunable terahertz-wave generation at room temperature[J]. Scientific Reports, 2015, 4(5): 5045-5049.
- [9] Zhang R L, Qu Y C, Zhao W J, *et al.* Si-prism-array coupled terahertz-wave parametric oscillator with pump light totally reflected at the terahertz-wave exit surface[J]. Optics Letters, 2016, 41(17): 4016-4018.
- [10] 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.

- [11] Li Y, Zhang X Y, Cong Z H, *et al.* Injection-seeded terahertz parametric oscillator based on ring-cavity configuration[J]. Chinese Journal of Lasers, 2017, 44(10): 1014001.  
李圆, 张行愚, 丛振华, 等. 基于环形腔结构的种子注入式太赫兹参量振荡器[J]. 中国激光, 2017, 44(10): 1014001.
- [12] Yang Z, Wang Y Y, Xu D G, *et al.* High-energy terahertz wave parametric oscillator with a surface-emitted ring-cavity configuration[J]. Optics Letters, 2016, 41(10): 2262-2264.
- [13] Sun B, Li S X, Liu J S, *et al.* Terahertz-wave parametric oscillator with a misalignment-resistant tuning cavity [J]. Optics Letters, 2011, 36(10): 1845-1847.
- [14] Kawase K, Shikata J I, Minamide H, *et al.* Arrayed silicon prism coupler for a terahertz-wave parametric oscillator[J]. Applied Optics, 2001, 40(9): 1423-1424.
- [15] Imai K, Kawase K, Minamide H, *et al.* Achromatically injection-seeded terahertz-wave parametric generator [J]. Optics Letters, 2002, 27(24): 2173-2175.
- [16] Wang W T, Cong Z H, Chen X H, *et al.* Terahertz parametric oscillator based on KTiOPO<sub>4</sub> crystal[J]. Optics Letters, 2014, 39(13): 3706-3708.
- [17] Yan C, Wang Y Y, Xu D G, *et al.* Green laser induced terahertz tuning range expanding in KTiOPO<sub>4</sub> terahertz parametric oscillator[J]. Applied Physics Letters, 2016, 108(1): 011107.
- [18] Li Z Y, Bing P B, Yuan S. Theoretical analysis of terahertz parametric oscillator using KTiOPO<sub>4</sub> crystal [J]. Optics & Laser Technology, 2016, 82(4): 108-112.
- [19] Wu M H, Chiu Y C, Wang T D, *et al.* Terahertz parametric generation and amplification from potassium titanyl phosphate in comparison with lithium niobate and lithium tantalate[J]. Optics Express, 2016, 24(23): 25964-25973.
- [20] Wang W T, Cong Z H, Liu Z J, *et al.* THz-wave generation via stimulated polariton scattering in KTiOAsO<sub>4</sub> crystal [J]. Optics Express, 2014, 22(14): 17092-17098.
- [21] Ortega T A, Pask H M, Spence D J, *et al.* Stimulated polariton scattering in an intracavity RbTiOPO<sub>4</sub> crystal generating frequency-tunable THz output[J]. Optics Express, 2016, 24(10): 10254-10264.
- [22] 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.
- [23] Gao F L, Zhang X Y, Cong Z H, *et al.* Terahertz parametric oscillator with the surface-emitted configuration in RbTiOPO<sub>4</sub> crystal [J]. Optics & Laser Technology, 2018, 104(10): 37-42.
- [24] Wang W T, Zhang X Y, Wang Q P, *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.
- [25] 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.
- [26] Ikari T, Minamide H, Ito H. Energy scalable and high beam quality THz-wave parametric oscillator using surface emitted cavity configuration[C] // 2006 Joint 31st International Conference on Infrared Millimeter Waves and 14th International Conference on Terahertz Electronics, September 18-22, 2006, Shanghai, China. New York: IEEE, 2006: 333-333.