

## 光学太赫兹辐射源及其在脑创伤检测中的应用

徐德刚<sup>1,2,3</sup>, 王与焯<sup>1,2,3\*</sup>, 胡常灏<sup>1,2,3</sup>, 闫超<sup>1,2,3</sup>, 陈锴<sup>1,2,3</sup>, 王泽龙<sup>1,2,3</sup>, 聂港<sup>1,2,3</sup>,  
张嘉昕<sup>1,2,3</sup>, 姚建铨<sup>1,2,3</sup>

<sup>1</sup>天津大学精密仪器与光电子工程学院激光与光电子研究所, 天津 300072;

<sup>2</sup>天津大学光电信息技术教育部重点实验室, 天津 300072;

<sup>3</sup>天津大学微光机电系统技术研究室, 天津 300072

**摘要** 太赫兹波因其具有独特的优势,在生物医学检测、安全检查、通信和雷达等多种领域具有重要的应用前景,而太赫兹辐射源是太赫兹技术的应用基础,近年来得到了快速发展。基于光学非线性频率变换技术的太赫兹参量辐射源和差频辐射源可以产生调谐范围宽、输出能量高和单色性好的太赫兹波。本文综述了基于受激电磁耦子散射技术的太赫兹参量辐射源以及基于非线性光学差频技术的太赫兹差频辐射源的研究进展,着重叙述了当前太赫兹参量辐射源和差频辐射源在输出频率范围拓展、能量提高和快速调谐等方面的研究进展,以及太赫兹技术在脑创伤检测中的应用研究进展,并分析了光学太赫兹辐射源及其在脑创伤检测应用的关键技术问题以及发展趋势。

**关键词** 非线性光学; 太赫兹波; 受激电磁耦子散射; 太赫兹参量振荡; 差频; 脑创伤

中图分类号 O437

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202148.1914002

## 1 引言

太赫兹波(Terahertz wave, THz wave)是指频率在 0.1~10.0 THz 之间的电磁波<sup>[1]</sup>,在电磁波谱上,太赫兹波介于微波和远红外线之间,太赫兹波的频率范围及其在电磁波谱中所处的位置如图 1 所示。太赫兹波位于由电子学向光子学过渡的区域,因此具有很多独特的性质。与 X 射线相比,太赫兹波具有光子能量低的特点,而且对人体没有损伤。许多生物大分子的振动与转动能级,以及电介质、半

导体材料和超导材料等的声子振动能级均位于太赫兹频段,为此这些物质的太赫兹波谱有特异性吸收峰。太赫兹波对水具有很强的吸收性,对非金属和非极性材料具有较好的穿透性。与微波相比,太赫兹波具有较高的时间分辨率和灵敏度以及宽频率范围等优点。针对上述特点,太赫兹波在生物医学诊断<sup>[2-6]</sup>、安全检查<sup>[7-8]</sup>、无损检测<sup>[9-10]</sup>、太赫兹通信和雷达<sup>[11-12]</sup>等领域具有广泛的应用前景。

高效的太赫兹波产生技术是实现上述太赫兹频段全面研究与广泛应用的关键技术基础。由于太赫

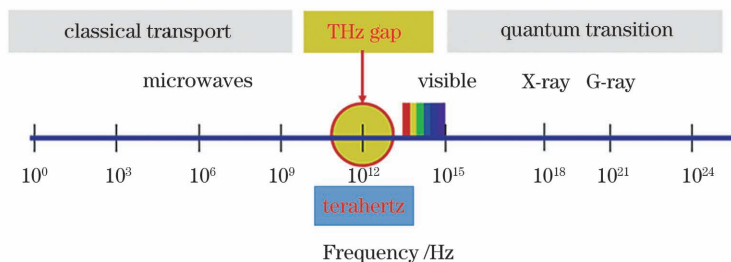


图 1 太赫兹波的频率范围及其在电磁波谱中所处的位置

Fig. 1 Frequency range of terahertz wave and its position in electromagnetic spectrum

收稿日期: 2021-06-16; 修回日期: 2021-07-15; 录用日期: 2021-07-21

基金项目: 国家自然科学基金(U1837202, 61775160, 61771332, 62011540006)

通信作者: \*yuyewang@tju.edu.cn

兹频段在电磁波谱上所处的特殊位置,目前太赫兹波的产生方法包括电子学方法和光子学方法两大类。基于电子学方法的太赫兹波产生技术主要包括基于真空电子学的反向波振荡器和回旋管,以及基于固态电子学的耿氏二极管和太赫兹自由电子激光器等。基于光子学方法的太赫兹波产生技术主要包括基于 CO<sub>2</sub> 激光泵浦的太赫兹气体激光器、基于半导体技术的太赫兹量子级联激光器、基于超短脉冲泵浦的宽带太赫兹辐射源,以及基于光学非线性频率变换技术的太赫兹参量辐射源和太赫兹差频辐射源等。

整体来讲,目前以电子学技术为基础的太赫兹辐射源的输出功率较高,但输出频率普遍低于 1 THz,且频率调谐能力较差。自由电子激光器可以输出不同频率的高功率太赫兹波,但是其体积庞大,费用昂贵,限制了其实际应用。以光子学技术为基础的太赫兹辐射源可以产生高频段的太赫兹波,但是基于 CO<sub>2</sub> 激光泵浦的太赫兹气体激光器的装置结构复杂,体积较大,而且使用成本较高;太赫兹量子级联激光器虽然体积较小,但是必须在超低温下工作,对工作环境要求较高;基于超短脉冲泵浦的宽带太赫兹辐射源的输出功率较低,而且单色性差;基于光学非线性频率变换技术的太赫兹辐射源(包括太赫兹参量辐射源和太赫兹差频辐射源)可以产生宽带可调谐、单色性好的太赫兹波,而且具有结构紧凑以及在室温下工作的优点,近几年得到了迅速的发展。

本文总结了基于光学非线性频率变换技术的太赫兹参量辐射源,包括太赫兹参量振荡器(Terahertz Parametric Oscillator, TPO)和太赫兹参量产生器(Terahertz Parametric Generator, TPG),以及太赫兹差频辐射源的研究进展,并且以太赫兹波成像和光谱技术在脑创伤检测中的应用为例,介绍了太赫兹波在生物医学检测中的应用研究进展。

## 2 太赫兹参量辐射源的研究进展

太赫兹参量辐射源的基本原理是高强度的激光入射到非线性晶体中,与晶体中同时具有红外活性和拉曼活性的晶格振动模耦合,产生受激电磁耦子散射,通过二阶参量过程和三阶受激拉曼散射过程产生太赫兹波。

由于受到太赫兹参量辐射源自身性质的限制,其通常采用非共线相位匹配来产生太赫兹波,相位匹配的条件如图 2 所示,其中  $k_P$ 、 $k_S$  和  $k_{THz}$  分别为

泵浦光、斯托克斯光和太赫兹波的波矢。

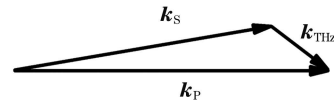


图 2 非共线相位匹配的条件

Fig. 2 Condition for non-collinear phase matching

根据能量守恒和动量守恒可以得到

$$\omega_P = \omega_S + \omega_{THz}, \quad (1)$$

$$|\mathbf{k}_{THz}|^2 = |\mathbf{k}_P|^2 + |\mathbf{k}_S|^2 - 2|\mathbf{k}_P||\mathbf{k}_S|\cos\theta, \quad (2)$$

式中: $\omega_P$ 、 $\omega_S$  和  $\omega_{THz}$  分别为泵浦光、斯托克斯光和太赫兹波的频率; $\theta$  为泵浦光束和斯托克斯光束之间的夹角。由(1)式和(2)式可以看到,通过改变  $\theta$  就能实现太赫兹波的频率调谐。

1963 年,日本东北大学的 Nishizawa<sup>[13]</sup> 从理论上证明了闪锌矿结构晶体可通过受激电磁耦子散射来产生太赫兹波。1969 年,美国贝尔实验室的 Kurtz 等<sup>[14]</sup> 基于铌酸锂(LiNbO<sub>3</sub>)晶体的受激电磁耦子散射实验观察到了频率为 19 THz 的远红外辐射。20 世纪 90 年代后,随着激光技术和晶体生长工艺的提升,太赫兹参量辐射源朝着宽调谐范围、高功率、窄线宽、小型化和实用化的方向迅速发展。

### 2.1 基于 1064 nm 激光泵浦的太赫兹参量辐射源的研究进展

从 20 世纪 90 年代开始,日本东北大学和理化学研究所等研究机构对基于 LiNbO<sub>3</sub> 晶体的太赫兹参量辐射源的耦合方式和输出结构进行了一系列研究,包括光栅结构耦合<sup>[15]</sup>、单硅棱镜耦合<sup>[16]</sup>、硅棱镜阵列耦合<sup>[17]</sup>以及晶体表面垂直输出结构<sup>[18]</sup>,结果表明硅棱镜阵列耦合方式和浅表面输出结构可以实现太赫兹波的高效耦合输出。通过研究不同掺杂浓度的氧化镁(MgO)铌酸锂晶体的太赫兹波输出特性,实验证明了物质的量分数为 5% 的 MgO:LiNbO<sub>3</sub> 晶体具有最高的太赫兹波增益<sup>[19]</sup>。由于受到 LiNbO<sub>3</sub> 晶体自身拉曼特性和太赫兹波段色散特性的限制,其产生太赫兹波的调谐频率始终限制在 1~3 THz 之间,因此有必要探索适用于太赫兹参量辐射源的高性能新晶体,进一步拓展太赫兹参量辐射源的频率调谐范围。

根据晶体中 Li 和 Nb 的物质的量比的不同,可将铌酸锂晶体分为同成分铌酸锂(CLN)晶体和近化学计量比铌酸锂(SLN)晶体。CLN 晶体中 Li 和 Nb 的物质的量比为 0.946, Li<sup>+</sup> 离子的缺失会产生

大量的本征缺陷,这些缺陷在一定程度上影响了 CLN 晶体的性能,使得基于 CLN 晶体的太赫兹参量辐射源的频率调谐范围较窄,并且输出能量较低<sup>[20]</sup>。SLN 晶体中 Li 和 Nb 的物质的量比约为 1,所以晶体中的缺陷较少,因此具有更好的光学性能,其  $A_1(TO_1)$  拉曼模具有更大的拉曼散射强度和更窄的谱线宽度,并且在太赫兹波段具有更大的折射率和更小的消光系数,因此采用基于 SLN 晶体的太赫兹参量辐射源可以提高太赫兹波的输出能量并且拓宽频率调谐范围<sup>[21]</sup>。随着生长工艺的逐步提升,SLN 晶体在 2015 年后开始应用于太赫兹波参量辐射源,并展现出了卓越的性能<sup>[22]</sup>。

2017 年,天津大学的 Wang 等<sup>[23]</sup>搭建了图 3 基于 MgO:SLN 晶体(MgO 的物质的量分数为 1%)的太赫兹参量振荡器,采用多模调 Q 的 Nd:YAG 激光器作为泵浦源,在单脉冲泵浦能量为 165 mJ 的情况下,对 MgO:SLN TPO 的太赫兹波输出频率调谐特性进行了研究。MgO:SLN TPO 的太赫兹波调谐曲线如图 4 所示。从图 4 可以看到,相较于传统的 MgO:CLN TPO, MgO:SLN TPO 将频率调谐上限从 3.00 THz 提升到了 4.64 THz,在 1.16~4.64 THz 频率之间实现了连续可调谐的太赫兹波输出,并且在 1.88 THz 频率处获得的最大太赫兹

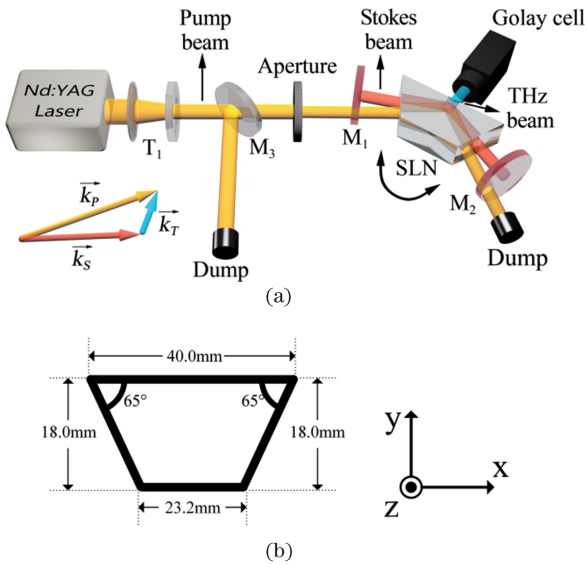


图 3 基于 MgO:SLN 晶体(MgO 物质的量分数为 1%)的太赫兹参量振荡器<sup>[23]</sup>。(a)实验装置;(b)晶体尺寸及切角

Fig. 3 Terahertz parametric oscillator based on MgO:SLN crystal (mole fraction of MgO is 1%)<sup>[23]</sup>. (a) Experimental device; (b) crystal size and cut angle

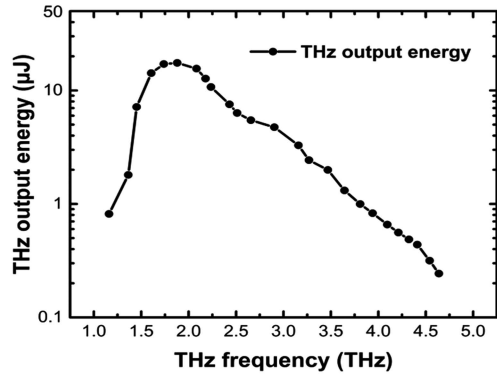


图 4 MgO:SLN TPO 的太赫兹波调谐曲线<sup>[23]</sup>

Fig. 4 THz tuning curve of MgO:SLN TPO<sup>[23]</sup>

波单脉冲能量为 17.49  $\mu\text{J}$ 。图 5 为 MgO:SLN TPO(MgO 的物质的量分数为 1%)和 MgO:CLN TPO(MgO 的物质的量分数为 5%)在相同泵浦条件(频率为 1.60 THz)下,太赫兹波的输出能量随泵浦能量的变化曲线。从图 5 可以看到,随着泵浦能量的增加, MgO:SLN TPO 产生的太赫兹波能量逐渐大于 MgO:CLN TPO,因此 MgO:SLN TPO 相比于 MgO:CLN TPO 可以有效提高太赫兹波的输出能量。

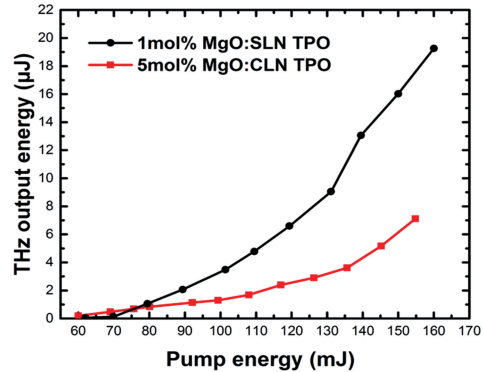


图 5 不同晶体的太赫兹波输出能量与泵浦能量的关系<sup>[23]</sup>

Fig. 5 Relationship between terahertz wave output energy of different crystals and pump energy<sup>[23]</sup>

虽然基于 MgO:SLN 晶体的太赫兹参量辐射源可以将频率调谐上限从 3.00 THz 提升至 4.64 THz,但是从图 4 可以看到,太赫兹波的输出能量在 3.00 THz 频率以上较低,因此有必要探索新晶体以进一步提高太赫兹波的频率调谐上限。磷酸钛氧钾( $\text{KTiOPO}_4$ , KTP)晶体和砷酸钛氧钾( $\text{KTiOAsO}_4$ , KTA)晶体具有多个位于太赫兹波段且同时具有红外活性和拉曼活性的  $A_1$  横向晶格振动模,是极具潜力的太赫兹参量增益介质,可以在更宽的范围内实现太赫兹波的输出。2014 年,



山东大学的 Wang 等<sup>[24-25]</sup>将 KTP 晶体和 KTA 晶体用于太赫兹参量振荡器,太赫兹波的调谐曲线如图 6 所示。基于 KTP 晶体的太赫兹参量振荡器的频率调谐范围为 3.17~6.13 THz,并在 5.72 THz 频率处获得的最高单脉冲能量为 336 nJ;基于 KTA 晶体的太赫兹参量振荡器的频

率调谐范围为 3.59~6.43 THz,在 4.30 THz 频率处获得的最高单脉冲能量为 627 nJ。但是从图 6 可以看到,由于晶体中存在晶格本征吸收和电磁耦合的类声子特性,基于上述两种晶体的太赫兹波的输出频率范围存在间隙,无法实现连续调谐输出。

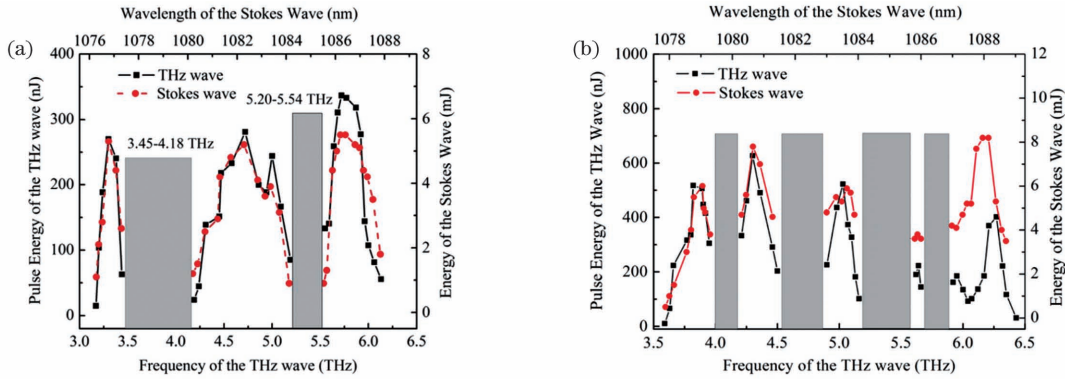


图 6 基于不同晶体的太赫兹参量振荡器的频率调谐输出曲线<sup>[24-25]</sup>。(a) KTP 晶体;(b) KTA 晶体

Fig. 6 Frequency tuning output curves of terahertz parametric oscillators based on different crystals<sup>[24-25]</sup>. (a) KTP crystal; (b) KTA crystal

传统 TPO 的调谐能力是通过旋转斯托克斯光的谐振腔和非线性晶体来改变泵浦光与斯托克斯光之间的相位匹配角实现的,由于同时需要转动的元件较多,这种结构很难实现快速调谐。2009 年,日本理化学研究所的 Minamide 等<sup>[26]</sup>设计了一种基于环形腔结构的太赫兹参量振荡器,仅旋转一个振镜就实现了太赫兹波在 0.93~2.70 THz 之间的快速调谐输出。2016 年,天津大学的 Yang 等<sup>[27]</sup>设计了图 7 基于晶体表面垂直输出的新型环形腔结构,该结构将腔镜 M4 安装在高速振镜上,可以通过改变

输入电压来实现腔内闲频光振荡方向的改变,进而改变太赫兹波的输出频率。利用基于晶体表面垂直输出的新型环形腔结构实现了太赫兹波在 0.7~2.8 THz 之间的快速调谐输出,每个频点的调谐时间仅为 600 μs,在 1.4 THz 处获得的最大单脉冲能量为 12.9 μJ。2018 年,天津大学的 Wang 等<sup>[28]</sup>将 KTP 晶体应用于基于晶体表面垂直输出的新型环形腔结构,实现了太赫兹波在 0.96~7.01 THz 之间的调谐输出,在 5.7 THz 处获得的最大单脉冲能量为 5.47 μJ。

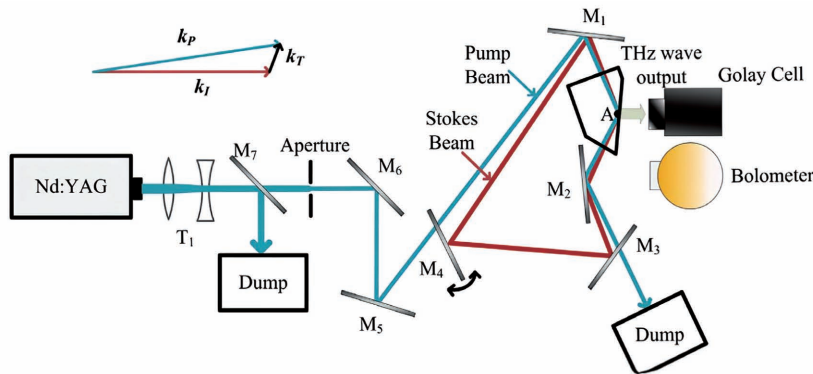


图 7 基于罗兰圆环形腔结构的晶体表面垂直输出太赫兹参量振荡器的实验装置<sup>[27]</sup>

Fig. 7 Experimental device of terahertz parametric oscillator with vertical output on crystal surface based on Roland circle cavity structure<sup>[27]</sup>

在上述太赫兹参量振荡器的实验装置中,泵浦光均是单程通过非线性晶体,但这会导致仅有部分泵浦光能量参与太赫兹波的产生,泵浦利用

率较低。为了进一步提高太赫兹参量振荡器的泵浦利用率,2019 年天津大学的 Tang 等<sup>[29]</sup>在环形腔结构的基础上将剩余泵浦光能量循环利用,基

于循环泵浦技术对 MgO:SLN TPO 进行了实验研究,基于循环泵浦技术的高效率太赫兹参量振荡器的实验装置如图 8 所示。当初始泵浦能量为 120 mJ 时,在有无循环泵浦的情况下基于环形腔的太赫兹参量振荡器的输出能量曲线如图 9 所

示。从图 9 可以看到,循环泵浦技术可以在整个频率调谐范围内实现太赫兹波输出能量的大幅度提高,提高泵浦利用率,这归因于泵浦光和斯托克斯光二阶参量效应的提高以及三阶受激电磁耦子散射阈值的降低。

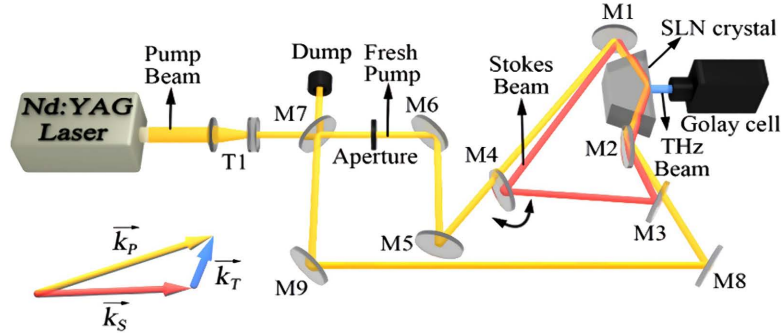


图 8 基于循环泵浦技术的高效率太赫兹参量振荡器的实验装置<sup>[29]</sup>

Fig. 8 Experimental device of high efficiency terahertz parametric oscillator based on circulating pump technology<sup>[29]</sup>

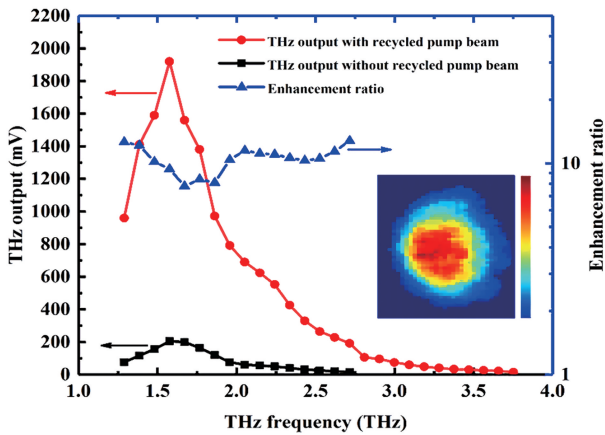


图 9 有无循环泵浦的情况下 TPO 的太赫兹波能量与频率的关系,插图为基于循环泵浦技术的 TPO 在距离晶体输出面 7 cm 处的太赫兹光斑<sup>[29]</sup>

Fig. 9 Relationship between terahertz wave energy and frequency of TPO with or without circulating pump, inset is terahertz light spot of TPO based on circulating pump technology at distance of 7 cm from crystal output surface<sup>[29]</sup>

以上太赫兹参量振荡器采用的都是脉冲宽度为纳秒量级的泵浦源,随着激光技术的迅速发展,亚纳秒激光器开始应用于太赫兹参量辐射源。较短的脉冲宽度不仅可以提高泵浦峰值能量,还可以有效抑制非线性晶体中的受激布里渊散射。2014 年,日本理化学研究所的 Hayashi 等<sup>[30]</sup>基于 MgO:LiNbO<sub>3</sub> 的种子注入式太赫兹参量产生器产生了峰值功率达到 50 kW 的超亮太赫兹波,亮度温度达到 10<sup>18</sup> K。2017 年,该团队的 Nawata 等<sup>[31]</sup>研究了泵浦光的脉冲宽度对太赫兹波输出效率的影响,结果显示当泵

浦光的脉冲宽度超过晶体声子寿命的 5 倍时,太赫兹波的输出效率迅速下降一个数量级以上。2017 年,台湾清华大学的 Chiu 等<sup>[32]</sup>设计了一种基于 LiNbO<sub>3</sub> 晶体的离轴太赫兹参量产生器,该器件可以克服 LiNbO<sub>3</sub> 晶体对高频段(频率大于 2.5 THz)太赫兹波吸收较强的缺点,相比于传统的太赫兹参量辐射源可以有效提高太赫兹高频段的输出能量。采用脉冲宽度为 460 ps 的泵浦光,在 4 THz 频率处产生了单脉冲能量为 1.4 nJ 的太赫兹波(泵浦光的单脉冲能量为 17.5 mJ)。

考虑到快速成像和光谱分析等领域的应用需求,近年来具有高重复频率和窄线宽的太赫兹辐射源是太赫兹领域的研究热点之一。2018 年,日本理化学研究所的 Moriguchi 等<sup>[33]</sup>采用脉冲宽度为 140 ps 的激光器作为泵浦源,在 100 kHz 的高重复频率下实现了峰值功率为 4 W、平均功率为 30 μW 的太赫兹波输出。2020 年,该团队分别采用半导体激光器和垂直腔面发射激光器作为泵浦光和种子光,基于种子注入技术和电控调谐系统获得了在 1.6 ~ 3.0 THz 频率之间高重复频率的太赫兹波,太赫兹波谱的采样分辨率达到 4.6 GHz<sup>[34]</sup>。2019 年,澳大利亚麦考瑞大学的 Zheng 等<sup>[35]</sup>基于内腔 TPO 技术在谐振腔中插入法布里-珀罗(F-P)标准具来压窄线宽,获得了线宽为 10 GHz 的连续太赫兹波输出,功率达到 13.7 μW,但是目前该方法无法实现宽带范围内的窄线宽太赫兹波输出。

## 2.2 基于 532 nm 激光泵浦的太赫兹参量辐射源的研究进展

泵浦波长与受激电磁耦子散射、非共线相位匹

配以及晶体本征吸收特性紧密相关。通过 2.1 节的研究可知,采用基于波长为 1064 nm 激光泵浦 KTP 晶体的太赫兹参量辐射源的频率调谐上限最高达到 7 THz,但无法实现更高频率的太赫兹波输出。针对这一问题,2016 年天津大学的 Yan 等<sup>[36]</sup>提出了基于波长为 532 nm 激光泵浦 KTP 晶体的太赫兹参量振荡器,该系统采用更短波长的泵浦光来得到更大受激电磁耦子散射的极化率,并且在更小的调谐角度内满足相位匹配的太赫兹频率范围更宽,从而进一步拓宽太赫兹频率调谐范围。当泵浦能量为 140 mJ 时,基于波长为 532 nm 激光泵浦 KTP 晶体的太赫兹参量振荡器实现了频率范围为 5.7~13.5 THz 的太赫兹波输出,在 7.57 THz 处获得的最大太赫兹波单脉冲能量为 1.61 μJ,对应的最大太赫兹波转换效率为  $1.3 \times 10^{-5}$ 。

多光谱太赫兹波成像以及太赫兹差分雷达等领域对双色甚至多色太赫兹辐射源有着迫切的需求。2017 年,日本名古屋大学的 Murate 等<sup>[37]</sup>提出基于可调谐多波长种子注入的太赫兹参量产生器,在 1~2 THz 频率之间实现了可调谐的多色太赫兹波输出。Murate 等<sup>[37]</sup>采用铌酸锂晶体作为太赫兹参量增益介质,多色太赫兹辐射均由同一电磁耦子产生,但这会导致在同一波长泵浦的情况下,不同频率的太赫兹波之间存在增益竞争,太赫兹波的输出能量较低。针对这一问题,2019 年天津大学的 Tang 等<sup>[38]</sup>基

于 1064 nm 和 532 nm 双波长泵浦的 KTP-TPO 在 3.15~11.63 THz 和 1.47~6.03 THz 频率之间实现了可调谐的双色太赫兹波输出,其中不同频率太赫兹波的参量产生过程不存在增益竞争,因此可以单独调节任一频率处太赫兹波的输出能量。

### 2.3 基于脉冲种子注入的太赫兹参量辐射源的研究进展

目前,基于近化学计量比铌酸锂晶体的太赫兹参量辐射源已经成功实现了调谐范围为 1~5 THz 的太赫兹波输出,然而仅在 1.4~2.2 THz 频率之间可以实现高能量的太赫兹波输出,但在高频段(频率大于 2.5 THz)的输出能量较低,这极大地限制了其实际应用。针对上述问题,2019 年天津大学的 Tang 等<sup>[39]</sup>提出了图 10 基于 SLN 晶体的脉冲种子注入式太赫兹参量产生器(Injection Pulse-seeded TPG, ips-TPG)。在相同的泵浦条件下对比了 ips-TPG 和传统 SLN-TPO 的太赫兹波输出调谐曲线以及能量衰减曲线,结果如图 11 所示。从图 11 可以看到,基于相干受激电磁耦子散射的 ips-TPG 不仅进一步将基于 LiNbO<sub>3</sub> 晶体的太赫兹参量辐射源的频率调谐上限提高至 5.15 THz,同时还弥补了高频段输出能量低的缺点。ips-TPG 输出能量的 3 dB 带宽相比于 SLN-TPO 实现了约 2.6 倍的提升,可以在更宽的范围内维持较高的输出能量。

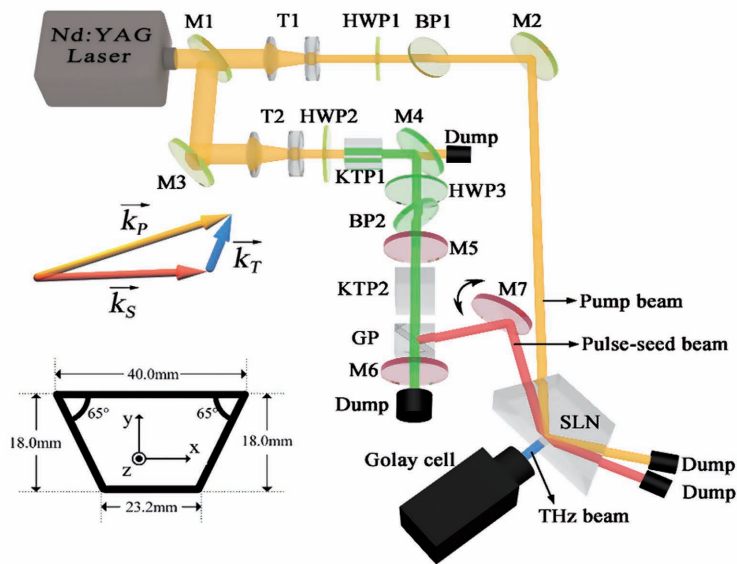


图 10 基于 MgO:SLN 晶体(MgO 的物质的量分数为 1%)的脉冲种子注入式太赫兹参量产生器的实验装置<sup>[39]</sup>  
 Fig. 10 Experimental device of pulsed seed injection terahertz parameter generator based on MgO:SLN crystal (mole fraction of MgO is 1%)<sup>[39]</sup>



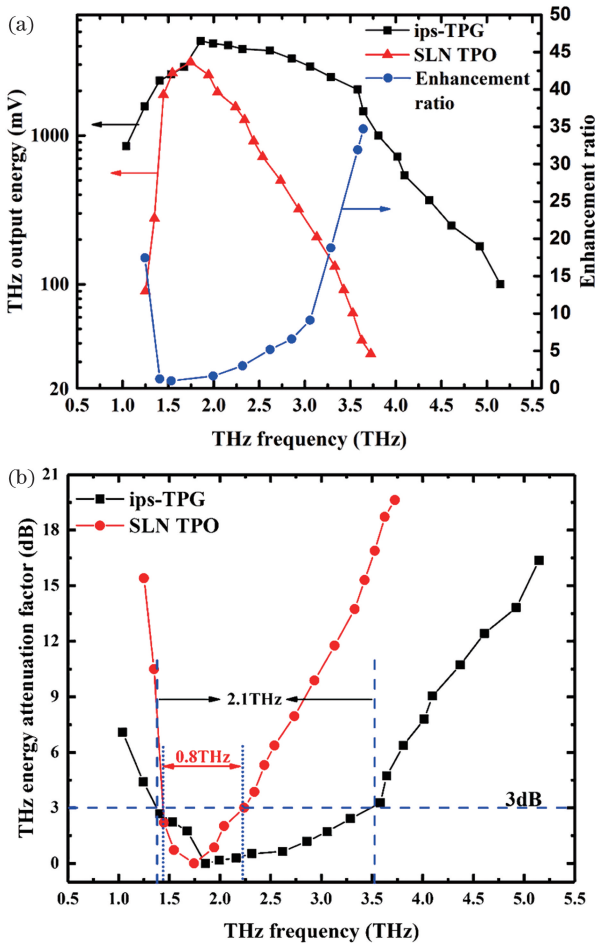


图 11 相同泵浦条件下 ips-TPG 和 SLN-TPO 的太赫兹波输出特性曲线<sup>[39]</sup>。(a)输出能量曲线;(b)能量衰减曲线

Fig. 11 Terahertz wave output characteristic curves of ips-TPG and SLN-TPO under the same pumping conditions<sup>[39]</sup>. (a) Output energy curves; (b) energy attenuation curves

### 3 基于非线性晶体的太赫兹差频辐射源的研究进展

基于差频方法产生太赫兹波的原理是利用两束波长相近的泵浦光在非线性晶体中通过二阶非线性差频作用来产生太赫兹波,这种方法没有泵浦阈值的限制,调谐范围可以覆盖整个太赫兹波段,并且可以产生窄线宽的太赫兹波。

基于差频技术的太赫兹差频辐射源一般采用结构简单的共线相位匹配结构。差频过程满足能量守恒和动量守恒,即

$$\omega_1 - \omega_2 = \omega_{\text{THz}}, \quad (3)$$

$$\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_{\text{THz}}, \quad (4)$$

式中: $\omega_1$  和  $\omega_2$  为两束泵浦光的频率; $\mathbf{k}_1$  和  $\mathbf{k}_2$  为两

束泵浦光的波矢。由(3)式和(4)式可以看到,通过改变两束泵浦光的波长就能实现太赫兹波的调谐输出。

1965年,Zernike等<sup>[40]</sup>利用Nd:YAG激光器得到了1.059  $\mu\text{m}$  和 1.073  $\mu\text{m}$  双波长的泵浦光,在石英晶体中差频获得了波长约为 100  $\mu\text{m}$  的太赫兹波输出。20世纪90年代后,随着晶体的生长工艺以及泵浦激光器性能的优化,基于光学差频方法产生太赫兹波的技术迅速发展。

目前应用于太赫兹差频辐射源的非线性晶体主要分为无机晶体和有机晶体两大类,本节针对无机晶体与有机晶体各自的特点总结了基于无机晶体和有机晶体的太赫兹差频辐射源的研究进展。

#### 3.1 基于无机晶体的太赫兹差频辐射源的研究进展

差频产生太赫兹波的技术所应用的无机晶体主要有铌酸锂(LiNbO<sub>3</sub>)、磷化镓(GaP)、磷锗锌(ZnGeP<sub>2</sub>)以及硒化镓(GaSe)等。其中GaSe晶体在THz波段的吸收系数较小,在红外波段的透过率较大,二阶非线性系数为54 pm/V,双折射率大,能够在较宽的波长范围内满足相位匹配的条件。2002年,理海大学的Shi等<sup>[41]</sup>以1  $\mu\text{m}$  波长附近的双波长光作为差频泵浦光,基于GaSe晶体在0.18~5.27 THz频率之间获得了连续可调谐的太赫兹波,输出峰值功率达到69.4 W。Shi等<sup>[42]</sup>以类似的实验装置在ZnGeP<sub>2</sub>晶体中实现了在1.0~4.5 THz频率之间连续可调谐的太赫兹波输出。2014年,理海大学的Ding<sup>[43]</sup>采用基于GaP晶体的太赫兹差频辐射源实现了在0.1~4.2 THz频率之间的太赫兹波输出,最高峰值功率达到3.77 kW。

虽然上述研究能够获得较高峰值功率的太赫兹波输出,但是脉冲重复频率较低,一般不超过500 Hz。为了满足快速采样等应用领域的需求,比如近场显微成像、高分辨率光谱以及超光谱成像等,高重频太赫兹辐射源是当前的研究热点之一。

2016年,天津大学的Mei等<sup>[44]</sup>基于端面泵浦的内腔光学参量振荡器获得了最大功率为4.15 W的2  $\mu\text{m}$  波长附近的双波长泵浦光,在GaSe晶体中差频获得了在0.24~3.78 THz频率之间的太赫兹波输出,脉冲重复频率达到25 kHz,最高平均功率为1.8  $\mu\text{W}$ 。2017年,天津大学的Yan等<sup>[45]</sup>采用图12的内腔声光调Q与双KTP-OPO技术产生了2  $\mu\text{m}$  波长附近的高重频双波长泵浦光,在GaSe晶体中差频获得了重复频率为10 kHz、调谐范围为

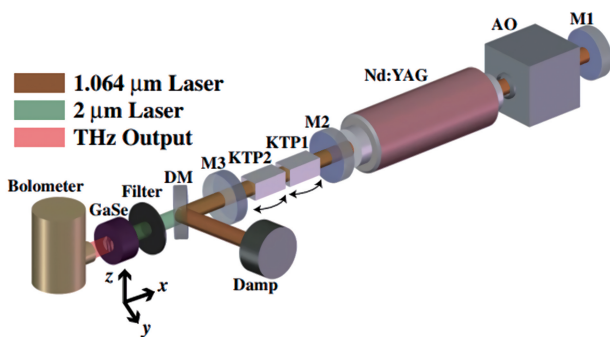


图 12 基于 GaSe 晶体差频获得高重频 THz 波的实验装置<sup>[45]</sup>

Fig. 12 Experimental device for obtaining high frequency THz wave based on GaSe crystal difference frequency<sup>[45]</sup>

0.21~3.00 THz 的太赫兹波输出,最大单脉冲能量达到 166 pJ,对应的能量转换效率为  $1.68 \times 10^{-6}$ ,光子转换效率为  $1.6 \times 10^{-4}$ 。

### 3.2 基于有机晶体的太赫兹差频辐射源的研究进展

由于受到晶体自身性质的限制,3.1 节基于无机晶体的太赫兹差频辐射源的频率调谐范围较窄,通常在 1~5 THz 之间。为了进一步提高调谐范围以弥补太赫兹高频段的空白,4'-dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium tosylate (DAST)、4-N,N-dimethylamino-4'-N'-methyl-stilbazolium 2,4,6-trimethylbenzenesulfonate (DSTMS)、4-dimethylamino-N'-methyl-4'-stilbazolium p-bromobenzenesulfonate (DASB)、2-(3-(4-Hydroxystyryl)-5,5-dimethylcyclohex-2-enylidene) malononitrile (OH1)、N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline (BNA) 和 2-(4-hydroxy-3-methoxystyryl)-1-methylquinolinium 2,4,6-trimethylbenzenesulfonate (HMQ-TMS) 等新型有机晶体被成功制备并广泛应用于太赫兹差频辐射源。与传统的无机晶体相比,新型有机晶体具有如下优势。1) 有机晶体在超宽带太赫兹波段内的吸收系数小,因此可以在超宽范围内实现太赫兹波的调谐输出;2) 由于新型有机晶体的自身结构特点,其有效非线性系数普遍很大(1000 pm/V 以上),并且损伤阈值较大(大于  $1.5 \text{ GW/cm}^2$ ),易于产生较大功率的太赫兹波,提高非线性过程的转换效率;3) 由于有机晶体的折射率在红外波段和太赫兹波段接近,所以相位匹配的条件较为宽松,一般可采用 0 类相位匹配,调谐过程较为方便。

作为生长技术最成熟的有机晶体,DAST 晶体目前已被广泛应用于太赫兹差频辐射源。2004 年,日本东北大学的 Taniuchi 等<sup>[46]</sup>采用双波长的 KTP-OPO 产生可调谐的双波长差频泵浦光,在 DAST 晶体中差频获得了频率范围为 2~20 THz 的可调谐的太赫兹波输出,同年该团队进一步将频率调谐范围拓展到了 30 THz<sup>[47]</sup>。在此基础上,2017 年天津大学的 He 等<sup>[48]</sup>采用图 13 基于绿光泵浦的双 KTP-OPO 系统产生差频所需的双波长泵浦光,在 DAST 晶体中差频获得了调谐范围为 0.3~20.0 THz 的太赫兹波,最大单脉冲能量为微焦量级,转换效率达  $10^{-4}$  量级,并在此基础上搭建了超宽带太赫兹频域光谱系统,该系统可以对固体、液体、等离子体以及生物样品进行超宽带太赫兹光谱检测。

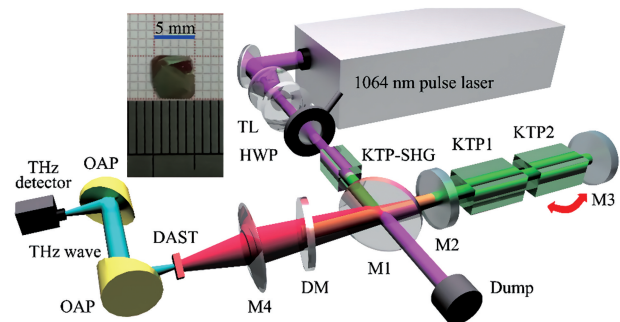


图 13 基于 DAST 晶体的太赫兹差频辐射源的实验装置<sup>[48]</sup>

Fig. 13 Experimental device of terahertz difference frequency radiation source based on DAST crystal<sup>[48]</sup>

在 DAST 晶体的基础上,研究人员通过更换阴离子基团成功研发了 DSTMS 和 DASB 等 DAST 晶体的同系物。2014 年,天津大学的 Liu 等<sup>[49]</sup>在 DSTMS 晶体中差频获得了在 0.88~19.27 THz 频率之间的超宽带太赫兹波,同年日本理化学研究所的 Matsukawa 等<sup>[50]</sup>在 DASB 晶体中差频获得了在 2~25 THz 频率之间的太赫兹波。DAST 及其同系物晶体由于受到自身本征吸收特性的限制,输出能量在 4 THz 频率以内较低。为了解决上述问题,研究人员开发了以 OH1 晶体和 BNA 晶体为代表的分子型晶体,以 HMQ-T 晶体和 HMQ-TMS 晶体为代表的喹啉体系以及苯并噻唑体系晶体。以 OH1 晶体为例,尽管其有效非线性系数较小,但相比于 DAST 晶体,其在低频太赫兹波段的吸收系数更小,输出能量更大,可以有效弥补 DAST 晶体低频段输出低的缺陷。2009 年,日本理化学研究所的 Miyamoto 等<sup>[51]</sup>采



用 780~950 nm 的双波长泵浦光在 BNA 晶体中差频,实现了频率范围为 0.1~20.0 THz 的太赫兹波输出,而且输出能量在 1~3 THz 频率之间较高。2016 年,天津大学的 Liu 等<sup>[52]</sup>基于双 KTP-OPO 系统产生双波长差频泵浦光,在 OH1 晶体中差频获得了频率范围为 0.02~20.00 THz 的超宽带太赫兹波,在 3 THz 频率以内的输出能量较高,在 1.92 THz 处的最高单脉冲能量为 507 nJ。

#### 4 太赫兹波在脑创伤检测中的应用研究

由于太赫兹波段覆盖了很多生物大分子的振动能级和转动能级,并且太赫兹波能量较低,对生物组织没有损伤,而且太赫兹波对水非常敏感,太赫兹光谱与成像技术在研究生物分子的结构特性和生物组织检测方面具有重要的应用前景。

脑创伤(Traumatic Brain Injury, TBI)是指超出人体自身保护能力的外部力量所导致的人脑损伤,例如由挤压、跌倒、爆炸波或弹丸穿透造成的损伤,这是当前最常见的高致死、致残率疾病之一<sup>[53]</sup>。按照脑创伤的严重程度可以将脑创伤的等级分为轻度、中度和重度,据估计,全球每年约有一千万人由脑创伤直接导致住院或者死亡,五千七百万人遭受过脑创伤,因此对于不同严重程度脑创伤的诊断和检测对其早期治疗和预后具有非常重要的意义。特

别的是,脑创伤中 75%~85%<sup>[54]</sup>为轻度创伤,对轻度脑创伤的成像检测和精确识别是当前神经外科领域的技术瓶颈,目前可用于脑组织创伤成像检测的方法包括 CT(Computed Tomography)<sup>[55]</sup>、核磁共振<sup>[56]</sup>和光声成像<sup>[57]</sup>等检测手段的单独或联合使用,但这些技术存在很多局限性,比如价格昂贵、设备庞大和灵敏度较低等。因此,探索一种新型的脑创伤检测手段对脑创伤的严重程度进行分级诊断具有十分重要的意义。

2018 年,天津大学的 Zhao 等<sup>[58]</sup>与陆军军医大学合作以大鼠击打性颅脑创伤模型为研究对象,研究了太赫兹成像技术用于不同程度颅脑创伤检测的可行性。实验过程中采用太赫兹透射式成像系统对脑创伤样本切片组织进行成像检测,并与核磁共振成像检测结果进行对比,结果如图 14 所示。从图 14 可以看到,不同程度的脑创伤组织对太赫兹波的吸收具有明显差异,因此太赫兹成像技术在脑创伤检测领域具有重要的应用前景。此外,为了进一步展示太赫兹波对脑创伤的成像效果,该小组提出了基于太赫兹波多深度切片成像的三维重建技术,实现了大鼠脑创伤组织太赫兹吸收特性的重构,三维模型如图 15 所示。从图 15 可以清楚地看到创伤灶的三维分布,说明多深度切片成像技术是一种实现生物组织太赫兹波三维成像的可行且有效的方法,有望应用于各种病变组织的病理学发展过程研究。

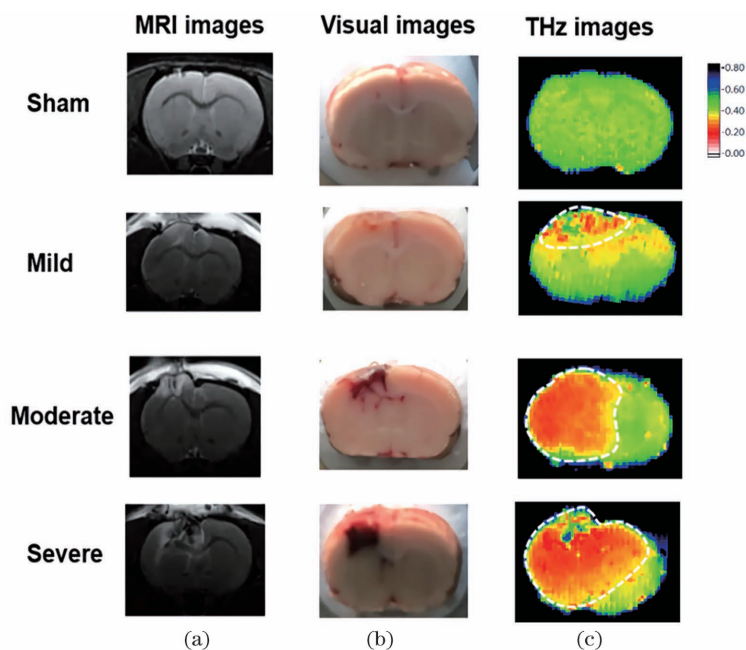


图 14 不同程度脑创伤组织的结果<sup>[58]</sup>。(a)核磁共振成像;(b)实物照片;(c)太赫兹波成像

Fig. 14 Results of different degrees of brain trauma<sup>[58]</sup>. (a) Magnetic resonance imaging; (b) photographs of the objects; (c) terahertz wave imaging

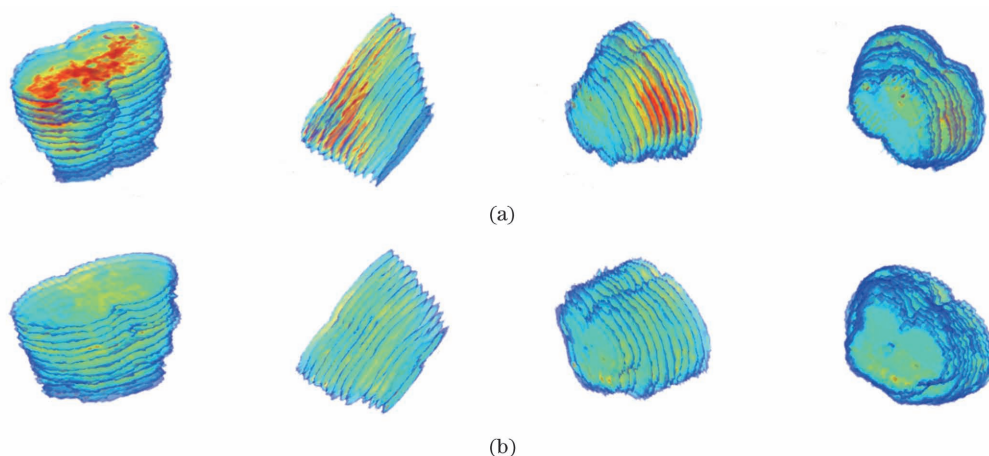


图 15 不同类型的鼠脑三维模型<sup>[58]</sup>。(a)创伤鼠脑;(b)正常鼠脑

Fig. 15 Different types of rat brain 3D models<sup>[58]</sup>. (a) Traumatic rat brain; (b) normal rat brain

2018 年,天津大学的 Shi 等<sup>[59]</sup>构建了不同程度脑创伤动物模型的太赫兹图像数据库,并提出了一种基于机器学习的太赫兹透射式成像方法,该方法结合了空间域强度分布特征提取技术和归一化灰度直方图统计分布特征提取技术,为此可以对不同严重程度度的脑创伤进行自动识别分类,准确率高达 87.5%。这种基于机器学习的脑创伤检测手段可以实现高准确率的自动分类识别,并且有望将其应用于其他病灶太赫兹成像的自动识别检测。2020 年,天津大学的 Wang 等<sup>[60]</sup>基于太赫兹衰减全反射光谱技术对于脑创伤相关的特征性物质进行了无标记诊断研究,研究了创伤后 24 h 的内脑脊液、血清以及海马和下丘脑总蛋白的太赫兹波谱特征随时间的变化规律。采用特征提取和机器学习中的分类算法对脑脊液和血清的太赫兹光谱数据库进行了分析,基于脑脊液和血清的冲击性脑创伤的分类准确率最高分别达到 94.4%和 95.2%,结果表明基于太赫兹衰减全反射技术和光谱信息处理技术可以实现高灵敏度、快速的脑创伤自动诊断。

## 5 结束语

在过去的三十年中,太赫兹技术在基础研究以及应用研究领域都取得了一定的进步和发展。高性能的太赫兹辐射源是实现太赫兹技术应用的基础,基于光学非线性频率变换技术的太赫兹参量辐射源和差频辐射源均具有调谐范围宽、输出能量高、单色性好和结构紧凑等优点,在太赫兹辐射源的研究中具有举足轻重的地位。本文结合相关的研究成果对太赫兹参量辐射源和太赫兹差频辐射源的研究进展进行了总结和讨论,包括对太赫兹参量辐射源晶体的探索、腔型结构的优化设计和泵浦波长的选择等,

以及基于无机晶体的高重频太赫兹差频辐射源和基于有机晶体的超宽带太赫兹差频辐射源等。随着具有高功率、宽调谐范围、窄线宽和高重复频率的太赫兹辐射源的快速发展,太赫兹技术在生物医学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以实现多种疾病的识别与诊断,弥补了传统检测方式的缺陷。相信随着研究的进一步深入,基于非线性频率变换技术的光学太赫兹辐射源的性能会进一步提升,太赫兹技术会应用到越来越多的领域中。

## 参 考 文 献

- [1] Pawar A Y, Sonawane D D, Erande K B, et al. Terahertz technology and its applications [J]. *Drug Invention Today*, 2013, 5(2): 157-163.
- [2] Grootendorst M R, Fitzgerald A J, de Koning S G B, et al. Use of a handheld terahertz pulsed imaging device to differentiate benign and malignant breast tissue [J]. *Biomedical Optics Express*, 2017, 8(6): 2932-2945.
- [3] El-Shenawee M, Vohra N, Bowman T, et al. Cancer detection in excised breast tumors using terahertz imaging and spectroscopy [J]. *Biomedical Spectroscopy and Imaging*, 2019, 8(1/2): 1-9.
- [4] Azab M Y, Hameed M F O, Nasr A M, et al. Highly sensitive metamaterial biosensor for cancer early detection [J]. *IEEE Sensors Journal*, 2021, 21(6): 7748-7755.
- [5] Lee D K, Kang J H, Lee J S, et al. Highly sensitive and selective sugar detection by terahertz nano-antennas [J]. *Scientific Reports*, 2015, 5: 15459.
- [6] Yang X, Shi J, Wang Y Y, et al. Label-free bacterial colony detection and viability assessment by continuous-wave terahertz transmission imaging [J].

- Journal of Biophotonics, 2018, 11(8): e201700386.
- [7] Cao E D, Yu Y, Song C B, et al. Method of food and drug detection under shielding of common wrappings based on terahertz time domain spectroscopy [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2021, 58(1): 0112002.  
曹恩达, 于勇, 宋长波, 等. 基于太赫兹时域谱分析的常见包裹物屏蔽下食品药品检测方法[J]. 激光与光电子学进展, 2021, 58(1): 0112002.
- [8] Tang Z M, Deng H, Liu Q C, et al. Quantitative analysis of low-concentration  $\alpha$ -HMX based on terahertz spectroscopy [J]. Analytical Methods, 2020, 12(47): 5684-5690.
- [9] Li K D, Chen X Q, Zhang R, et al. Classification for glucose and lactose terahertz spectrums based on SVM and DNN methods [J]. IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology, 2020, 10(6): 617-623.
- [10] Zhong S C. Progress in terahertz nondestructive testing: a review [J]. Frontiers of Mechanical Engineering, 2019, 14(3): 273-281.
- [11] Xiao Z, Yang Q, Huang J, et al. Terahertz communication windows and their point-to-point transmission verification [J]. Applied Optics, 2018, 57(27): 7673-7680.
- [12] Xie S, Li H R, Li L X, et al. Survey of terahertz communication technology [J]. Journal on Communications, 2020, 41(5): 168-186.
- [13] Nishizawa J. History and characteristics of semiconductor laser [J]. Denshi Kagaku, 1963, 14(1): 17-31.
- [14] Kurtz S K, Giordmaine J A. Stimulated Raman scattering by polaritons [J]. Physical Review Letters, 1969, 22(5): 192-195.
- [15] 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.
- [16] 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.
- [17] 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): 1423-1426.
- [18] 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.
- [19] 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.
- [20] Dmitriev V G, Gurzadyan G G, Nikogosyan D N. Handbook of nonlinear optical crystals [M]. Wang J Y, Transl. 3rd ed. Beijing: Higher Education Press, 2009.  
Dmitriev V G, Gurzadyan G G, Nikogosyan D N. 非线性光学晶体手册 [M]. 王继扬, 译. 3 版. 北京: 高等教育出版社, 2009.
- [21] Sun S Q, Xia H R, Ran D G, et al. The study of lattice vibration and phase transition soft mode in near stoichiometric lithium niobate crystals [J]. The Journal of Light Scattering, 2006, 18(3): 254-261.  
孙尚倩, 夏海瑞, 冉栋刚, 等. 近化学计量比铌酸锂晶体的晶格振动和相变软模研究 [J]. 光散射学报, 2006, 18(3): 254-261.
- [22] Murate K, 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.
- [23] Wang Y Y, Tang L H, Xu D G, et al. Energy scaling and extended tunability of terahertz wave parametric oscillator with MgO-doped near-stoichiometric LiNbO<sub>3</sub> crystal [J]. Optics Express, 2017, 25(8): 8926-8936.
- [24] 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): 3706-3709.
- [25] 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.
- [26] Minamide H, Ikari T, Ito H. Frequency-agile terahertz-wave parametric oscillator in a ring-cavity configuration [J]. The Review of Scientific Instruments, 2009, 80(12): 123104.
- [27] Yang Z, Wang Y Y, Xu D G, et al. THz wave parametric oscillator with a surface-emitted ring-cavity configuration [J]. Optics Letters, 2016, 41(10): 2262-2265.
- [28] Wang Y Y, Ren Y C, Xu D G, et al. Energy scaling and extended tunability of a ring cavity terahertz parametric oscillator based on KTiOPO<sub>4</sub> crystal [J]. Chinese Physics B, 2018, 27(11): 114213.
- [29] Tang L H, Xu D G, Wang Y Y, et al. Efficient ring-cavity terahertz parametric oscillator with pump recycling technique [J]. IEEE Photonics Journal, 2019, 11(1): 18407902.
- [30] Hayashi S, Nawata K, Taira T, et al. Ultrabright



- continuously tunable terahertz-wave generation at room temperature[J]. *Scientific Reports*, 2014, 4: 5045.
- [31] 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.
- [32] Chiu Y C, Wang T D, Zhao G, et al. Discovery of phase-matched stimulated polariton scattering near 4 THz in lithium niobate[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(23): 4-7.
- [33] 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): 121103.
- [34] Moriguchi Y, Tokizane Y, Takida Y, et al. Frequency-agile injection-seeded terahertz-wave parametric generation[J]. *Optics Letters*, 2020, 45(1): 77-80.
- [35] Zheng Y M, Lee A, Spence D, et al. Linewidth-narrowing of a continuous wave terahertz polariton laser using an intracavity etalon[J]. *Optics Letters*, 2019, 45(1): 157-160.
- [36] 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.
- [37] Murate K, Hayashi S, Kawase K. Multiwavelength terahertz-wave parametric generator for one-pulse spectroscopy[J]. *Applied Physics Express*, 2017, 10(3): 032401.
- [38] Tang L H, Xu D G, Wang Y Y, et al. Tunable dual-color terahertz wave parametric oscillator based on KTP crystal [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(23): 5675-5678.
- [39] Tang L H, Xu D G, Wang Y Y, et al. Injection pulse-seeded terahertz-wave parametric generator with gain enhancement in wide frequency range[J]. *Optics Express*, 2019, 27(16): 22808-22818.
- [40] Zernike F, Berman P R. Generation of far infrared as a difference frequency[J]. *Physical Review Letters*, 1965, 15(26): 999-1001.
- [41] Shi W, Ding Y J, Fernelius N, et al. Efficient, tunable, and coherent 0.18-5.27-THz source based on GaSe crystal[J]. *Optics Letters*, 2002, 27(16): 1454-1456.
- [42] Shi W, Ding Y J. Continuously tunable and coherent terahertz radiation by means of phase-matched difference-frequency generation in zinc germanium phosphide[J]. *Applied Physics Letters*, 2003, 83(5): 848-850.
- [43] Ding Y J. Progress in terahertz sources based on difference-frequency generation [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2014, 31(11): 2696-2711.
- [44] Mei J L, Zhong K, Wang M R, et al. Widely-tunable high-repetition-rate terahertz generation in GaSe with a compact dual-wavelength KTP OPO around 2 μm [J]. *Optics Express*, 2016, 24(20): 23368-23375.
- [45] Yan D X, Wang Y Y, Xu D G, et al. High-average-power, high-repetition-rate tunable terahertz difference frequency generation with GaSe crystal pumped by 2 μm dual-wavelength intracavity KTP optical parametric oscillator[J]. *Photonics Research*, 2017, 5(2): 82-87.
- [46] Taniuchi T, Okada S, Nakanishi H. Widely tunable terahertz-wave generation in an organic crystal and its spectroscopic application [J]. *Journal of Applied Physics*, 2004, 95(11): 5984-5988.
- [47] Taniuchi T, Adachi H, Okada S, et al. Continuously tunable THz and far-infrared wave generation from DAST crystal[J]. *Electronics Letters*, 2004, 40(9): 549-550.
- [48] He Y X, Wang Y Y, Xu D G, et al. High-energy and ultra-wideband tunable terahertz source with DAST crystal via difference frequency generation[J]. *Applied Physics B*, 2017, 124(1): 16.
- [49] Liu P X, Xu D G, Li Y, et al. Widely tunable and monochromatic terahertz difference frequency generation with organic crystal DSTMS [J]. *EPL (Europhysics Letters)*, 2014, 106(6): 60001.
- [50] Matsukawa T, Notake T, Nawata K, et al. Terahertz-wave generation from 4-dimethylamino-N'-methyl-4'-stilbazolium p-bromobenzenesulfonate crystal: effect of halogen substitution in a counter benzenesulfonate of stilbazolium derivatives [J]. *Optical Materials*, 2014, 36(12): 1995-1999.
- [51] Miyamoto K, Ohno S, Fujiwara M, et al. Optimized terahertz-wave generation using BNA-DFG [J]. *Optics Express*, 2009, 17(17): 14832-14838.
- [52] Liu P X, Zhang X, Yan C, et al. Widely tunable and monochromatic terahertz difference frequency generation with organic crystal 2-(3-(4-hydroxystyryl)-5,5-dimethylcyclohex-2-enylidene) malononitrile [J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 108(1): 011104.
- [53] Ghajar J. Traumatic brain injury [J]. *The Lancet*, 2000, 356(9233): 923-929.
- [54] Murray C, Lopez A. Global health statistics: a compendium of incidence prevalence and mortality estimates for over 200 conditions[R]. Geneva: World

- Health Organization, 1996.
- [55] Shenton M E, Hamoda H M, Schneiderman J S, et al. A review of magnetic resonance imaging and diffusion tensor imaging findings in mild traumatic brain injury[J]. *Brain Imaging and Behavior*, 2012, 6(2): 137-192.
- [56] Wunder A, Schoknecht K, Stanimirovic D B, et al. Imaging blood-brain barrier dysfunction in animal disease models[J]. *Epilepsia*, 2012, 53(S6): 14-21.
- [57] Yang S H, Xing D, Lao Y Q, et al. Noninvasive monitoring of traumatic brain injury and post-traumatic rehabilitation with laser-induced photoacoustic imaging[J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 90(24): 243902.
- [58] Zhao H L, Wang Y Y, Chen L Y, et al. High-sensitivity terahertz imaging of traumatic brain injury in a rat model[J]. *Journal of Biomedical Optics*, 2018, 23(3): 036015.
- [59] Shi J, Wang Y Y, Chen T N, et al. Automatic evaluation of traumatic brain injury based on terahertz imaging with machine learning[J]. *Optics Express*, 2018, 26(5): 6371-6381.
- [60] Wang Y Y, Wang G Q, Xu D G, et al. Terahertz spectroscopic diagnosis of early blast-induced traumatic brain injury in rats[J]. *Biomedical Optics Express*, 2020, 11(8): 4085-4098.

## Optical Terahertz Radiation Sources and Terahertz Application in Traumatic Brain Injury

Xu Degang<sup>1,2,3</sup>, Wang Yuye<sup>1,2,3\*</sup>, Hu Changhao<sup>1,2,3</sup>, Yan Chao<sup>1,2,3</sup>, Chen Kai<sup>1,2,3</sup>, Wang Zelong<sup>1,2,3</sup>, Nie Gang<sup>1,2,3</sup>, Zhang Jiabin<sup>1,2,3</sup>, Yao Jianquan<sup>1,2,3</sup>

<sup>1</sup>*Institute of Laser and Optoelectronics, School of Precision Instruments and Optoelectronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China;*

<sup>2</sup>*Key Laboratory of Optoelectronic Information Technology (Ministry of Education), Tianjin University, Tianjin 300072, China;*

<sup>3</sup>*Micro Optical Electronic Mechanical System Technology Laboratory, Tianjin University, Tianjin 300072, China*

### Abstract

**Significance** Terahertz wave generation technology has rapidly become efficient recently and is the key, foundational technology to realize a wide application of terahertz band in comprehensive research. The terahertz band, located in the transition region from traditional electronics to photonics, has low energy, water sensitivity, special penetrability and many other unique properties. With respect to these characteristics, terahertz wave has widely used applications in biomedical diagnosis, safety inspection, nondestructive testing, terahertz communication and radar. Terahertz parametric and difference frequency radiation sources, based on optical nonlinear frequency conversion technology, can generate wideband tunable, monochromatic terahertz waves. Terahertz parametric and difference frequency radiation sources also have the advantage of compact structure and utilization at room temperatures(18–30 °C).

With the improvement of laser technology and crystal growth technology, terahertz parametric radiation source and terahertz difference frequency radiation sources are developing rapidly to expand frequency tuning range, improve output energy, narrow terahertz wave linewidth resulting in a series of new technologies, such as ring cavity, circulating pump, and pulse-seeded injection.

**Progress** Compared with congruent MgO-doped lithium niobite(MgO:CLN) crystal, the upper tuning frequency limit of terahertz parametric oscillator based on near-stoichiometric MgO-doped lithium niobite(MgO:SLN) crystal can be increased from 3 THz to 4.64 THz (Fig. 4). Terahertz parametric oscillator based on KTiOPO<sub>4</sub> (KTP) and KTiOAsO<sub>4</sub> (KTA) crystal can further improve the frequency tuning upper limit of terahertz wave; even though there are gaps in the frequency tuning range, continuous tuning cannot be achieved (Fig. 6). Terahertz parametric oscillator based on ring cavity can broaden the frequency tuning range of terahertz wave and improve the output energy (Fig. 7). Terahertz parametric oscillator based on pump recycling technology can improve the pump efficiency and greatly increase the output energy of terahertz wave in the entire frequency tuning range (Fig. 9). Comparing the pump source with ns pulse width, the terahertz parametric radiation source based on sub-ns pump

laser can not only improve the pump peak energy but also effectively suppress the stimulated Brillouin scattering in nonlinear crystal, considerably improving the output energy. Pulse-seeded injection technology not only further improves the frequency tuning upper limit of the terahertz parametric oscillator based on  $\text{LiNbO}_3$  crystal to 5.15 THz but also addresses the disadvantage of low output energy in high frequency band to maintain high output energy in a wider range (Fig. 11).

Based on dual KTP-optical parametric oscillation (KTP-OPO) technology, terahertz difference frequency radiation source based on inorganic crystal such as GaSe can achieve high repetition rate terahertz wave output (Fig. 12), which can be used in near-field microscopy, rapid scanning THz spectroscopy and other occasions, requiring high repetition rate of terahertz wave. Terahertz difference frequency radiation source based on 4'-dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium tosylate (DAST), 4-N, N-dimethylamino-4'-N'-methyl-stilbazolium 2, 4, 6-trimethylbenzenesulfonate (DSTMS), N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline (BNA), and other organic crystals can achieve ultra-wideband terahertz wave output in the range of 1 THz to 30 THz.

Owing to the characteristics of terahertz wave, i. e., low energy, water sensitivity, and fingerprint spectrum, terahertz technology has a good application potential in the field of traumatic brain injury detection. For example, multi depth slice terahertz imaging technology can accurately identify the severity of traumatic brain injury (Fig. 15). Terahertz imaging technology based on machine learning can automatically recognize and classify different degrees of traumatic brain injury samples.

**Conclusions and Prospects** Terahertz parametric and difference frequency sources based on optical nonlinear frequency conversion technology can generate terahertz wave with high output energy, wide frequency tuning range, and narrow linewidth. With the improvement of terahertz radiation source performance, terahertz technology will have greater applications in biomedical detection, nondestructive detection, safety inspection, terahertz radar, and so on.

**Key words** nonlinear optics; terahertz wave; stimulated polariton scattering; terahertz parametric oscillation; difference frequency; traumatic brain injury

**OCIS codes** 190.4410; 190.4710; 250.4390