・封面文章・

# 基于 MgO:CLN 晶体的脉冲种子注入式 太赫兹波参量产生源

徐德刚<sup>1,2</sup>, 闫超<sup>1,2</sup>, 聂港<sup>1,2</sup>, 唐隆煌<sup>1,2</sup>, 陈锴<sup>1,2</sup>, 王与烨<sup>1,2</sup>\*, 姚建铨<sup>1,2</sup>

1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;

²教育部光电信息技术科学重点实验室, 天津 300072

**摘要** 同成分铌酸锂(CLN)晶体是最常用的太赫兹参量增益晶体,基于该晶体的太赫兹波参量辐射源具有太赫兹 波输出能量高、连续可调谐等优点,但是其调谐范围相对较窄,一般为 0.6~3 THz,限制了其实际应用范围。为 此,提出基于摩尔分数为 5% 的氧化镁掺杂的 CLN 晶体的脉冲种子注入式太赫兹波参量产生器,其太赫兹波频率 调谐范围为 1~4 THz,在 2.0 THz 处获得最大输出能量为 1.02 μJ,输出太赫兹波的 3 dB 带宽达 1.94 THz,占调 谐范围的 64.67%。该太赫兹辐射源具有宽频带、增益平坦等特性,在实际应用中具有更高的价值。

**关键词** 非线性光学;太赫兹波;脉冲种子注入;太赫兹参量产生器;受激电磁耦子 中图分类号 O437.3 **文献标志码** A **doi**:

doi: 10.3788/AOS202040.1519002

## Injection Pulse-Seeded Terahertz-Wave Parametric Generator Based on MgO:CLN Crystal

Xu Degang<sup>1,2</sup>, Yan Chao<sup>1,2</sup>, Nie Gang<sup>1,2</sup>, Tang Longhuang<sup>1,2</sup>,

Chen Kai<sup>1,2</sup>, Wang Yuye<sup>1,2\*</sup>, Yao Jianquan<sup>1,2</sup>

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

<sup>2</sup> Key Laboratory of Opto-Electronic Information Technology (Tianjin University), Ministry of Education, Tianjin 300072, China

Abstract Congruent lithium niobate (CLN) is the most commonly used terahertz parametric gain crystal. The terahertz-wave parametric source based on the CLN crystal has the advantages of high terahertz-wave output energy and continuous tunability, but its tuning range is relatively narrow, generally during 0.6-3 THz, which limits its practical applications. Therefore, an injection pulse-seeded terahertz-wave parametric generator based on 5% mol MgO:CLN crystal is proposed. The terahertz-wave frequency tuning range is 1-4 THz, and the maximum output energy is 1.02  $\mu$ J at 2.0 THz. The 3 dB bandwidth of the output terahertz wave is 1.94 THz, accounting for 64.67% of the tuning range. The terahertz radiation source has the characteristics of broadband and flat gain, and has higher value in practical applications.

Key words nonlinear optics; terahertz wave; pulse-seeded injection; terahertz-wave parametric generator; stimulated polariton scattering

OCIS codes 190.4410; 040.2235; 290.5910

## 1引言

太赫兹(THz)波是位于微波和红外光之间,频 率范围为 0.1~10 THz 的电磁波。随着太赫兹波 产生和探测技术的高速发展,其在医学成像、无损检 测、光谱分析、环境检测等方面具有极为重要的应用 前景。目前比较成熟的太赫兹波辐射源的连续调谐 范围一般为1~3 THz。然而,在一些特定领域,如 半导体检测、分子内振动测量等,需要工作频率在 3 THz 以上的连续可调谐太赫兹源<sup>[1-2]</sup>。

收稿日期: 2020-04-13;修回日期: 2020-04-28;录用日期: 2020-05-06

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

<sup>\*</sup> E-mail: yuyewang@tju.edu.cn

基于受激电磁耦子散射的太赫兹波参量产生器 (TPG)是一种极为重要的太赫兹波产生方法,具有 输出能量高、调谐范围广、结构紧凑、室温运行等优 点。常用的太赫兹参量增益晶体有很多,例如  $LiNbO_3$  (LN),  $RbTiOPO_4$  (RTP),  $KTiOPO_4$ (KTP)、KTiOAsO4(KTA)等。其中,利用 KTP 晶 体能实现 3.1~13.5 THz 的宽调谐输出,但是该输 出频谱中包含几个频率间隔,无法实现太赫兹波的 连续调谐输出<sup>[3-4]</sup>。同成分铌酸锂(CLN)晶体由于 其二阶和三阶非线性系数高、最低阶 A1 对称模频 率正处于太赫兹波段,因而成为最常用的太赫兹参 量增益晶体。基于该晶体的太赫兹辐射源具有输出 能量高、连续可调谐等优点,但是其调谐范围相对较 窄,一般为 0.6~3 THz<sup>[5-8]</sup>。近年来,为了改善 CLN 晶体的太赫兹波输出特性,人们采取了很多有 效的方法。例如,使用硅棱镜耦合以提高太赫兹波 的输出效率<sup>[9]</sup>;利用 CLN 晶体的浅表面产生并出射 太赫兹波,以减少晶体对太赫兹波的大量吸收<sup>[10]</sup>; 使用亚纳秒激光作为泵浦源,以抑制受激布里渊散 射,从而提高受激电磁耦子散射增益[11];低温冷却 CLN 晶体至 78 K,从而减少晶体对太赫兹波的吸 收并提高太赫兹波增益<sup>[12]</sup>;改变 MgO 的掺杂浓度 以提高晶体的损伤阈值等[13]。这些特殊的结构设 计或方法,使得输出太赫兹波具有高能量、窄线宽等 优点。但是它们仍然不能有效地扩展太赫兹波的频 率调谐范围。最近,Ortega等<sup>[14]</sup>通过在 CLN 晶体浅 表面镀聚四氟乙烯保护涂层,提高了晶体的损伤阈 值,在提升最大输出能量的同时,将 CLN 晶体的太赫 兹波输出频率上限扩展到了 3.84 THz,但是太赫兹 波输出能量在最大值附近迅速下降,高能量太赫兹波 输出主要集中在 1.6~2.4 THz。本文课题组开展了 基于近化学计量比铌酸锂(SLN)晶体的太赫兹参量 振荡或产生的研究工作,将铌酸锂晶体的太赫兹波输 出频率上限从3 THz 扩展到了5 THz<sup>[15]</sup>,但其高能 量太赫兹波输出主要集中在 1.4~2.0 THz。当频率 大于 2.5 THz 时,输出能量则下降至最大输出的一半 以下,导致可用于实际应用的太赫兹频段依旧较窄。 同时,近化学计量比铌酸锂晶体的高昂造价使得该类 太赫兹波参量辐射源成本较高。

本文基于摩尔分数为5%的氧化镁掺杂的同成 分铌酸锂晶体(MgO:CLN),采用脉冲种子注入式 太赫兹波参量产生器(ips-TPG),将同成分铌酸锂 晶体的输出频率上限扩展到4THz。当泵浦能量与 注入脉冲种子光能量分别为184 mJ/pulse 和 20 mJ/pulse 时,太赫兹波的调谐范围为1~4 THz,且其输出3 dB带宽为1.94 THz,占调谐范围的64.67%。同时,在2 THz处获得最大输出能量1.02  $\mu$ J。此外,ips-TPG在30 min 内输出太赫兹波的均方根误差(RMSE)值约为5.6%。

#### 2 实验研究

太赫兹波参量产生器的原理是基于非线性增益 介质的受激电磁耦子散射。在受激电磁耦子散射过 程中,一个泵浦光子转化为一个斯托克斯光子和一 个太赫兹光子。这一转化过程满足能量守恒( $\omega_p = \omega_s + \omega_T$ )和动量守恒( $k_p = k_s + k_T$ )。脉冲种子光的 注入,能够有效地补偿太赫兹波参量过程中斯托克 斯光的增益衰减,提高受激拉曼散射过程的输出增 益,同时增强太赫兹波参量过程的二阶非线性作用, 从而提高太赫兹波的输出能量。通过改变同成分铌 酸锂晶体中种子光与泵浦光之间的相位匹配角,可 以实现太赫兹波的频率调谐输出。

图 1 为脉冲种子注入式太赫兹波参量产生器 (ips-TPG)的实验装置图。如图1所示,实验使用 的泵浦光源是Nd:YAG 激光器,其脉冲中心波长为 1064.4 nm,重复频率为 10 Hz,脉宽为 10 ns,光束 直径为8 mm。激光器出射的 1064 nm 泵浦光被 45°的近红外光半透半反镜 M<sub>1</sub> 分成光束 1 和光束 2。两束 1064 nm 激光分别经过相同的望远镜组合  $T_1$ 、 $T_2$ , 光束直径被缩小为 5 mm。 $M_2$  和  $M_3$  均镀 有近红外光的 45°高反膜。进一步,1064 nm 光束 1 通过半波片 HWP<sub>1</sub>和布鲁斯特窗 BP<sub>1</sub>的组合,偏振 方向被调节为 S 偏振,作为 ips-TPG 的泵浦光。 1064 nm 光束 2 的偏振由半波片 HWP2 进行调节, 以满足 KTP1 晶体中倍频光产生的相位匹配条件 (KTP<sub>1</sub>: 7 mm  $\times$  7 mm  $\times$  10 mm,  $\theta = 90^{\circ}$ ,  $\varphi =$ 23.5°)。倍频作用后,基频光(1064 nm)与倍频光 (532 nm)被镀有 532 nm 高反、1064 nm 高透的滤 波镜 M<sub>4</sub> 分开。半波片 HWP<sub>3</sub> 和布鲁斯特窗 BP<sub>2</sub> 的组合将 532 nm 激光的偏振方向调整为 P 偏振, 并控制其输出能量。平面镜 M<sub>5</sub>、M<sub>6</sub>、KTP<sub>2</sub> 晶体、 布鲁斯特窗 BP。共同构成一个单谐振的光参量振 荡器(SR-OPO),532 nm 激光是该 SR-OPO 的泵浦 光。其中, M5、M6 对 532 nm 激光高透, 对 1064 nm 激光高反,组成 SR-OPO 的前后腔镜;KTP。是非线 性作用晶体(10 mm×8 mm×20 mm, $\theta = 90^\circ, \varphi =$ 24.5°),被放置在一个转台上。SR-OPO的相位匹 配类型是Ⅱ类相位匹配,产生的 P 偏振信号光透过

BP<sub>3</sub> 在腔内振荡,而 S 偏振闲频光则被 BP<sub>3</sub> 反射出 谐振腔,作为 ips-TPG 的注入脉冲种子光。通过旋 转 KTP<sub>2</sub> 晶体可以实现对种子光波长的调节,其调 节范 围 为 1068.10 ~ 1084.56 nm。 $M_7$  是一个 532 nm 高反、近红外范围高透的平面镜,用于防止 残留的 532 nm 光进入 CLN 晶体中。M<sub>8</sub> 是一个近 红外波段高反镜,它将脉冲种子光注入到 CLN 晶 体中。且 M<sub>8</sub> 被放置在一个转台上,调节转台角度 可以改变泵浦光与种子光的相位匹配角,使得输出 的太赫兹波能量最大。



图 1 ips-TPG 实验装置图(插图为 CLN 晶体的结构示意图) Fig. 1 Experimental setup of ips-TPG(Insert is schematic of CLN crystal structure)

插图是实验使用的 MgO:CLN 晶体的结构示 意图。晶体被切割成一个等腰梯形,其尺寸在 x、v 和z方向上分别为55 mm、24 mm 和10 mm。其表 面经过抛光处理但未镀膜。泵浦光和种子光的偏振 方向都沿晶体的 z 轴,且在整个调谐过程中,两者 始终在晶体的浅表面交叠。晶体的特殊结构设计, 能保证太赫兹波近垂直于晶体浅表面出射,减少太 赫兹波由于晶体吸收和菲涅耳反射带来的损耗,且 又能保证泵浦光和种子光在晶体表面发生全反射。 实验中使用高莱探测器(Golay cell,GC-1P,Tydex, 俄罗斯)测量太赫兹波的能量,其功率转换系数为 86.95 kV/W。此外,为了防止残留的红外光进入 高莱探测器中,高莱探测器窗口前放置有 0.5 mm 厚的黑色聚乙烯薄片以滤除红外杂散光,其在不同 太赫兹波频率处的透过率由太赫兹时域光谱仪标定 (TAS7500SP, Advantest Corporation, 日本)。种子 光和 Stokes 光的波长使用光谱分析仪(86142B, Agilent,美国)测量,泵浦光和种子光的能量则使用 能量计(1919-R, Newport, 美国)测量。

### 3 实验结果与讨论

首先,对 ips-TPG 中太赫兹波及斯托克斯光输 出频率调谐特性进行研究。对 SR-OPO 中 KTP<sub>2</sub> 晶体不同旋转角度下对应的 ips-TPG 的 Stokes 波 长进行测量,并代入能量守恒公式  $\omega_p = \omega_s + \omega_T$  中 计算得到相对应的太赫兹波频率,如图 2 所示。当 KTP<sub>2</sub> 晶体的旋转角度为 0°~7.5°时,ips-TPG 的 Stokes 光波长从 1068.2 nm 变化至 1079.7 nm,相 对应的太赫兹波频率调谐范围为 1~4 THz。

图 3 所示为泵浦能量 184 mJ/pulse、脉冲种子 光能量 20 mJ/pulse 时, ips-TPG 在不同频率时的 能量输出曲线。当种子光波长从 1068.2 nm 调谐 至 1079.7 nm 时,相应的太赫兹波输出频率从 1 THz 连续调谐至 4 THz。其中,在 2 THz 处实现 最大能量输出,为 1.02  $\mu$ J;在 1 THz 处的能量输出 最小,为 96.92 nJ,对应示波器的电压分别为 315 mV 和 30 mV。插图为太赫兹波能量衰减因子  $A_{\rm T}$  随调谐频率的变化特性,公式为



图 2 ips-TPG 中太赫兹波及斯托克斯光输出频率调谐特性 Fig. 2 Tuning characteristics of THz wave and Stokes output frequency in ips-TPG

$$A_{\rm T} = 10 \times \lg(E_{\rm Max}/E_{\rm T}), \qquad (1)$$

式中: $E_{Max}$ 代表最大的输出能量; $E_T$ 为每个频率点处的太赫兹波能量。 $A_T$ 的值越小,代表这一频率点处的太赫兹波产生能力越强。此处,引入3dB带宽来衡量 ips-TPG 在每个频率点处的太赫兹波产生能力。在3dB带宽内,所有频率点的输出能量均大于最大输出能量的一半。从插图中可以看到, ips-TPG 的3dB带宽达1.94 THz,而此前在同成分铌酸锂晶体中得到的3dB带宽一般都小于1THz<sup>[16-18]</sup>。此外,在频率大于2.5 THz的高频输出部分,2.5~3.32 THz仍处于3dB带宽之中。这说明 ips-TPG 能够有效地提高高频输出的能量,拓宽可利用的 THz 频率范围。

进一步,针对泵浦能量和脉冲种子能量对太赫 兹波输出特性的影响进行了实验研究。将脉冲种子 的能量分别固定在 0.53 mJ、3.06 mJ、10.34 mJ、 20.2 mJ、30.0 mJ 和 37.3 mJ,测量 2.2 THz 处不 同泵浦能量下 ips-TPG 的输出特性,如图 4(a)所 示。本文将高莱探测器探测到的太赫兹信号略大于





图 3 ips-TPG 的太赫兹波调谐输出特性(插图为 ips-TPG 的 太赫兹波能量衰减因子)

Fig. 3 Terahertz wave tuning output characteristics of ips-TPG(Inset is THz energy attenuation factors of ips-TPG)

噪声信号(约为10mV)时对应的泵浦能量定义为 阈值能量。可以看到,在不同种子光能量下,当泵浦 能量逐渐增大时,输出的太赫兹波能量近似呈线性 增长,且没有观察到饱和现象(为防止晶体损坏,没 有继续加大泵浦能量)。在相同泵浦功率下,太赫兹 波输出能量随着注入脉冲种子能量的增加而增大, 特别是当脉冲种子能量超过 20 mJ 时,太赫兹波输 出能量趋于稳定。此外,当脉冲种子能量较低时, ips-TPG 输出太赫兹波的阈值较高;而当脉冲种子 能量大于 20 mJ 时, ips-TPG 的阈值泵浦能量趋于 相同。为了进一步研究上述两种现象,将泵浦能量 固定在 184 mJ/pulse,测量 2.2 THz 处不同种子光 能量下的太赫兹波输出特性,如图 4(b)所示。图 中,太赫兹波的输出曲线大致分为两个部分。当脉 冲种子能量从 0.53 mJ 增长到 7.27 mJ 时,太赫兹 波输出能量近似呈线性增长;而当脉冲种子能量



图 4 泵浦能量和注入脉冲种子能量对太赫兹波输出特性的影响。(a)不同泵浦能量下,ips-TPG 输出太赫兹波能量; (b)不同脉冲种子能量下,ips-TPG 输出太赫兹波能量及阈值能量

Fig. 4 Effects of pumped energy and injected pulse seed energy on terahertz wave output characteristics. (a) THz output energy of ips-TPG under different pump energies; (b) THz output energy and threshold energy under different pulse-seed energies

超过 7.27 mJ 时,太赫兹波的输出能量增长变缓并 逐渐饱和。这说明脉冲种子光的注入能量会影响太 赫兹波的输出饱和。此外,由图 4(b)可知,当脉冲 种子光能量逐渐增大时,泵浦阈值能量明显降低。 当种子光能量为 20 mJ/pulse 时,泵浦阈值仅为 30 mJ/pulse,与无种子光情况下 120 mJ/pulse 的 泵浦阈值能量相比,减小了 1/4。

图 5 为基于刀口法测量获得的太赫兹波光斑能量分布特性。此时太赫兹波频率为 2.0 THz, 泵浦 光 和 种 子 光 能 量 分 别 为 184 mJ/pulse 和 20 mJ/pulse。可以看到,输出的太赫兹光斑能量近 似呈高斯分布。以光斑中心最大能量的 86.5%定 义光斑的大小,测得太赫兹光斑直径约为 5.5 mm, 与互作用的泵浦光和种子光 5 mm 的直径接近,说 明 ips-TPG 输出的太赫兹波光束质量良好。



Fig. 5 Energy distribution of terahertz spot

最后,对 ips-TPG 输出的太赫兹波能量稳定性 进行了研究。在泵浦能量为 150 mJ/pulse、种子光 能量为 20 mJ/pulse 时,利用高莱探测器采集了 30 min内 2 THz 处太赫兹波能量的变化情况。实 验中共采集了 1800 组数据,结果如图 6 所示。引入 RMSE 来直观表示输出太赫兹波的稳定性情况。 RMSE 的值越小代表输出太赫兹波的稳定性越好。



图 6 30 min 内 ips-TPG 的太赫兹波输出稳定性情况 Fig. 6 Stability of THz output of ips-TPG within 30 min

其计算公式为

$$\Delta \bar{E} = \left\{ \left[ \sum_{i=1}^{n} (E_i - \bar{E})^2 \right] / n \right\}^{1/2} .$$
 (2)

ips-TPG 在 30 min 内输出太赫兹波的 RMSE 值为 5.6%,说明 ips-TPG 具有良好的输出稳定性。

#### 4 结 论

本文基于摩尔分数为 5% 的氧化镁掺杂的 CLN 晶体的脉冲种子注入式太赫兹波参量产生器进行实 验研究。结果表明, ips-TPG 能够有效地扩展输出 太赫兹波的调谐范围。其太赫兹波频率调谐范围为  $1\sim4$  THz,最大输出能量在 2 THz 处为  $1.02 \mu$ J,且 输出 3 dB 带宽为 1.94 THz,占调谐范围的 64.67%。此外, 30 min 内太赫兹波的输出不稳定 性为 5.6%。这说明, ips-TPG 具有宽频带、增益平坦 的太赫兹波输出特性,该研究为基于 CLN 晶体的太 赫兹波参量辐射源在实际领域中的应用奠定了基础。



- [1] Huber R, Tauser F, Brodschelm A, et al. How many-particle interactions develop after ultrafast excitation of an electron-hole plasma [J]. Nature, 2001, 414(6861): 286-289.
- [2] Niessen K A, Xu M Y, Markelz A G. Terahertz optical measurements of correlated motions with possible allosteric function [J]. Biophysical Reviews, 2015, 7(2): 201-216.
- [3] 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.
- [4] Wang W, Cong Z, Chen X, et al. Terahertz parametric oscillator based on KTiOPO<sub>4</sub> crystal [J]. Optics Letters, 2014, 39(13): 3706-3709.
- [5] Takida Y, Shikata J I, Nawata K, et al. Terahertzwave parametric gain of stimulated polariton scattering [J]. Physical Review A, 2016, 93(4): 043836.
- [6] Lee A J, Pask H M. Continuous wave, frequencytunable terahertz laser radiation generated via stimulated polariton scattering [J]. Optics Letters, 2014, 39(3): 442-445.
- [7] Lee A, He Y B, Pask H. Frequency-tunable THz source based on stimulated polariton scattering in Mg:LiNbO3[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 2013, 49(3): 357-364.
- [8] Li Z Y, Yao J Q, Xu D G, et al. Experimental investigation of high-power tunable THz-wave

parametric oscillator based upon MgO : LiNbO<sub>3</sub> crystal[J]. Chinese Journal of Lasers, 2011, 38(4): 0411002.

李忠洋,姚建铨,徐德刚,等. 铌酸锂晶体中参量振 荡产生高功率可调谐太赫兹波的实验研究[J].中国 激光,2011,38(4):0411002.

- [9] Zhang R L, Qu Y C, Zhao W J, et al. High energy, widely tunable Si-prism-array coupled terahertz-wave parametric oscillator with a deformed pump and optimal crystal location for angle tuning [J]. Applied Optics, 2017, 56(9): 2412-2417.
- [10] 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): 4016-4019.
- [11] 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.
- [12] Shikata J, Sato M, Taniuchi T, et al. Enhancement of terahertz-wave output from LiNbO<sub>3</sub> optical parametric oscillators by cryogenic cooling[J]. Optics Letters, 1999, 24(4): 202-204.

- Ken-Ichi K, Jun-Ichi S, Kodo K, et al. Terahertzwave parametric generation characteristics of MgO: LiNbO<sub>3</sub> [J]. Electronics and Communications in Japan (Part II: Electronics), 2002, 85(4): 22-29.
- [14] 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.
- [15] Wang Y Y, Tang L H, Xu D G, et al. Energy scaling and extended tunability of terahertz wave parametric oscillator with MgO-doped nearstoichiometric LiNbO<sub>3</sub> crystal [J]. Optics Express, 2017, 25(8): 8926-8936.
- [16] 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.
- [17] Zhang R L, Qu Y C, Zhao W J, et al. Outputmirror-tuning terahertz-wave parametric oscillator with an asymmetrical porro-prism resonator configuration [J]. Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves, 2017, 38(6): 653-659.
- [18] Imai K, Kawase K, Ito H. A frequency-agile terahertz-wave parametric oscillator [J]. Optics Express, 2001, 8(13): 699-704.