

基于 DAST 晶体差频的可调谐 THz 辐射源

徐德刚^{1,2,3}, 朱先立^{1,2,3}, 王与烨^{1,2,3*}, 李吉宁^{1,2,3}, 贺奕斌^{1,2,3}, 庞子博⁴, 程红娟⁴, 姚建铨^{1,2,3}

¹ 天津大学精密仪器与光电子工程学院, 天津 300072;

² 天津大学激光与光电子研究所, 天津 300072;

³ 天津大学光电信息技术教育部重点实验室, 天津 300072;

⁴ 中国电子科技集团公司第四十六研究所, 天津 300220

摘要 基于自发成核法自行生长的 4-(4-二甲基氨基苯乙烯基)甲基吡啶对甲苯酸盐(DAST)晶体, 可实现宽带可调谐 THz 辐射输出。实验探究饱和和生长溶液质量浓度对晶体生长形态和光学质量的影响, 并结合晶体的拉曼光谱, 对其生色团振动和转动特性进行分析。采用波长为 1.3~1.5 μm 的高能量、可调谐双波长的激光为泵浦光, 基于 0 类相位匹配外腔差频和电控振镜快速扫描技术, 实现了 0.1~20.0 THz 的宽带 THz 辐射输出。在 18.9 THz 处, 每个脉冲最大输出能量为 3.59 μJ , 转换效率为 2.39×10^{-4} 。基于宽带 THz 输出谱可知, DAST 晶体对 THz 波的吸收主要是因为晶格振动引起的。

关键词 探测器; 太赫兹; DAST 晶体; 自发成核法; 差频

中图分类号 O437

文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202040.0404001

Tunable THz Radiation Source Based on DAST Crystal via Difference Frequency Generation

Xu Degang^{1,2,3}, Zhu Xianli^{1,2,3}, Wang Yuye^{1,2,3*}, Li Jining^{1,2,3}, He Yixin^{1,2,3},
Pang Zibo⁴, Cheng Hongjuan⁴, Yao Jianquan^{1,2,3}

¹ School of Precision Instrument and Opto-Electronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China;

² The Institute of Laser & Opto-Electronics, Tianjin University, Tianjin 300072, China;

³ Key Laboratory of Opto-Electronic Information Technology, Ministry of Education, Tianjin University, Tianjin 300072, China;

⁴ The 46th Research Institute, China Electronics Technology Group Corporation, Tianjin 300220, China

Abstract A 4-dimethylamino-N'-meth-yl-4'-stilbazolium tosylate (DAST) crystal grown by spontaneous nucleation method can realize a tunable broadband THz radiation source. Effects of mass concentration of saturated growth solution on the crystal growth morphology and optical quality are investigated, and the vibration and rotation characteristics of the chromophore are analyzed by the Raman spectrum of the crystal. Using the high-energy and tunable dual-wavelength laser within the wavelength range of 1.3–1.5 μm as a pump source, the broadband THz radiation output in the range of 0.1–20.0 THz is achieved by the 0-phase matching external-cavity different frequency and galvano-optical fast scanning technology. The maximum output energy of each pulse is 3.59 μJ at 18.9 THz, and the energy conversion efficiency is 2.39×10^{-4} . Based on the broadband THz output spectrum, it is found that the absorption of THz wave by the DAST crystal is mainly caused by lattice vibration.

Key words detectors; terahertz; DAST crystal; spontaneous nucleation method; different frequency

OCIS codes 040.2235; 070.4790; 190.4400

收稿日期: 2019-09-02; 修回日期: 2019-10-16; 录用日期: 2019-11-06

基金项目: 国家 973 计划(2015CB755403)、国家自然科学基金(61775160, 61771332)、中国博士后科学基金(2016M602954)

* E-mail: yuyewang@tju.edu.cn

1 引 言

太赫兹(THz)波具有光子能量低、频谱范围宽以及抗干扰能力强等特点,在无损检测、生物医疗、雷达探测和数据传输等方面有着巨大的发展潜力和广阔的应用范围^[1-4]。特别是在生物大分子的光谱分析等应用领域^[5]中,获得超宽带 THz 波的物理化学信息对研究分子振动和转动特性至关重要,因此,探索超宽带 THz 辐射源成为当前 THz 技术的研究热点。在众多的 THz 波产生方法中,非线性差频技术(DFG)由于具有结构紧凑、易于调整、室温运转等优点,成为产生超宽带 THz 辐射的有效手段之一。在差频产生超宽带 THz 辐射技术中,非线性光学晶体是决定 THz 辐射输出性能的重要因素。目前来说,传统无机晶体,如 LiNbO_3 、GaSe、GaAs、 ZnGeP_2 等^[6-9],由于在 THz 波段具有较高的吸收系数以及受限于晶格振动模的影响,基于无机晶体的 THz 辐射源输出带宽一般小于 7 THz,不能满足人们对 THz 辐射源超宽带性能的要求。随着科学技术的发展以及新材料的不断出现,新型有机非线性光学晶体凭借更大的非线性系数以及色散平坦等特性,易于实现宽带范围内的相位匹配,逐渐成为产生超宽带 THz 辐射的理想材料。

在众多新型有机晶体材料中,非线性光学晶体 4-(4-二甲基氨基苯乙烯基)甲基吡啶对甲苯酸盐(DAST)具有高二阶非线性系数、低介电常数、高损伤阈值和高电光系数等特点,成为产生超宽带 THz 辐射的最佳晶体之一^[10-11]。DAST 晶体由于较低的熔点(256 ± 1) °C 和分解点(260 ± 5) °C,只能使用水溶液法进行晶体生长^[12]。目前来说,DAST 晶体的主要生长方法有籽晶法^[13]、斜板法^[14]、激光诱导成核法^[15]、双温区法^[16]和自发成核法^[17]。籽晶法可以有效控制晶体成核时间和成核位置,能解决晶体粘连问题,适合大尺寸晶体生长;斜板法可以对晶体的成核位置和晶体生长取向进行有效控制,并可减小瓶底应力对晶体生长质量造成的影响;激光诱导成核法可以控制晶核的成核位置,并能加速成核时间,可有效缩短晶体的生长周期;双温区法可以实现晶体生长溶液的扩散和对流,抑制生长区内的自发成核现象,可有效避免杂晶的出现;自发成核法可以使多个晶体同时成核,可一次性大量制备单晶材料,生长装置相对简单,易于操作,是目前制备 DAST 晶体最成熟的方法。此外,在 DAST 晶体制

备过程中,饱和生长溶液质量浓度会影响晶体的结晶速率以及光学质量,因此,优化饱和生长溶液质量浓度对制备大尺寸、高质量的 DAST 晶体具有重要的指导意义。

在基于 DAST 晶体差频产生宽带 THz 辐射方面,1999 年,Kawase 等^[18]使用 800 nm 的双波长激光泵浦 DAST 晶体,通过差频法获得频率为 1.4 THz 的 THz 波输出。2000 年,该课题组使用周期性极化铌酸锂晶体光学参量振荡(PPLN-OPO)产生的 1.5 μm 附近的双波长激光为泵浦光,并结合 PPLN 的温度调谐特性,在 DAST 晶体中实现了 1.9~2.5 THz 范围内的 THz 波输出^[19]。此后,人们通过提高双波长泵浦光调谐范围的方法来拓展 THz 辐射的输出带宽,其中磷酸钛氧钾晶体光学参量振荡(KTP-OPO)^[20-21]、硼酸钡晶体光学参量振荡(BBO-OPO)^[22]、连续可调谐光纤激光器^[23]等能产生双波长的泵浦方式相继被提出,这些方式可将 THz 的输出带宽拓展到 30 THz。此外,在拓展 THz 波带宽的同时,也更加注重 THz 波输出能量的提高。2008 年,Shibuya 等^[24]为了提高双波长泵浦光的功率密度,将 DAST 晶体置于 KTP-OPO 内,首次实现了基于 DAST 晶体的内腔差频 THz 波输出。2012 年,Nawata 等^[25]使用 Nd:YAG 激光器产生的高能量双波长直接泵浦 DAST 晶体,在 3.2 THz 处获得 1.2 nJ 的能量输出。2017 年,为了有效避免 THz 波在 DAST 晶体传输过程中的强吸收效应,Uchida 等^[26]使用 Cherenkov 相位匹配并结合 Si 棱镜耦合输出的方式,在 DAST 晶体中实现了 THz 波的斜向输出,有效提高了部分频点的输出能量。目前来说,基于 DAST 晶体差频产生 THz 波的研究主要集中在拓展调谐带宽以及提高输出能量等方面,而对 THz 波输出光谱特性分析的研究则相对较少。

本文采用自发成核法自行生长有机 DAST 晶体,探究了晶体生长过程中饱和生长溶液质量浓度对晶体生长形态和光学质量的影响。通过获取 DAST 晶体的拉曼光谱,对晶体的生色团振动和转动特性进行了分析。基于 0 类相位匹配外腔差频和电控振镜快速扫描技术,获得 0.1~20.0 THz 的宽带可调谐 THz 辐射输出,在 18.9 THz 处,单脉冲最大输出能量达到 3.59 μJ ,转换效率为 2.39×10^{-4} 。最后,基于晶体的宽带 THz 输出谱,对 DAST 晶体在 THz 波段的主要吸收峰来源进行分析。

2 实 验

2.1 DAST 晶体制备

采用化学合成的方法制备 DAST 晶体原料粉末,并通过过滤和多次重结晶进行提纯,最终制备出高纯度的 DAST 晶体生长原粉。本文采用自发成核法生长 DAST 晶体,分别配置 3.0 g/100 mL、3.5 g/100 mL 和 4.0 g/100 mL 3 种不同饱和生长溶液质量浓度的 600 mL DAST-甲醇溶液。将 DAST-甲醇溶液转移到育晶瓶中,然后放入降温程序已设定(初始温度为 50 ℃,生长区间降温速率为 0.25 ℃/d,控温精度为 0.01~0.03 ℃)的生长炉(生长装置如图 1 所示)中分批次进行水浴生长,每一批次的生长时间设定为 15 d。

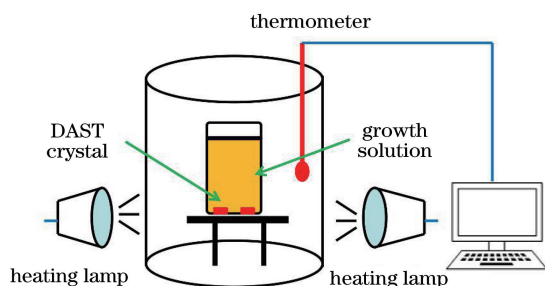


图 1 自发成核法制备 DAST 晶体的生长装置

Fig. 1 Growth device of DAST crystal by spontaneous nucleation method

2.2 基于 DAST 晶体的差频 THz 辐射源实验装置搭建

基于 DAST 晶体的差频 THz 辐射源实验装置如图 2 所示。将声光调 Q 的 LD 泵浦 Nd:YAG 激光器(1064 nm, 10 Hz, 9 ns)作为泵浦源,泵浦光经 45°高反镜 M1 通过半波片 M2 调整偏振态后入射到倍频 KTP 晶体(尺寸 7 mm×7 mm×10 mm, 切角 $\theta=90^\circ$, $\varphi=23.5^\circ$, 其中 θ 表示基频光波矢与晶轴 z 的夹角, φ 表示基频光波矢在晶体 xoy 面投影与晶轴 x 的夹角)中,通过二次谐波产生(SHG)532 nm 的倍频光。倍频光经过镜片 M3 进入 KTP-OPO 产生可调谐的近红外信号光。KTP-OPO 由前腔镜 M4(800~900 nm HR, 532 nm 和 1300~1500 nm HT)、后腔镜 M5(532 nm 和 800~900 nm HR)以及两块 II 类相位匹配切角的 KTP 晶体(尺寸 7 mm×10 mm×15 mm, 切角 $\theta=65^\circ$, $\varphi=0^\circ$)组成,通过电控振镜调整 KTP2 晶体角度可以实现 1.3~1.5 μm 波长的可调谐信号光输出,其中 HR 表示高反,HT 表示高透。双波长信号光经谐波波镜 M6(532 nm HR, 1300~1500 nm HT)和聚焦镜 M7(焦距 f 为 150 mm)入射到自行生长的 DAST 晶体,基于 0 类相位匹配条件可以产生宽带 THz 波。THz 波经 6 mm 厚的黑色聚乙烯薄片滤掉剩余泵浦光后入射到 Golay cell 中进行探测。

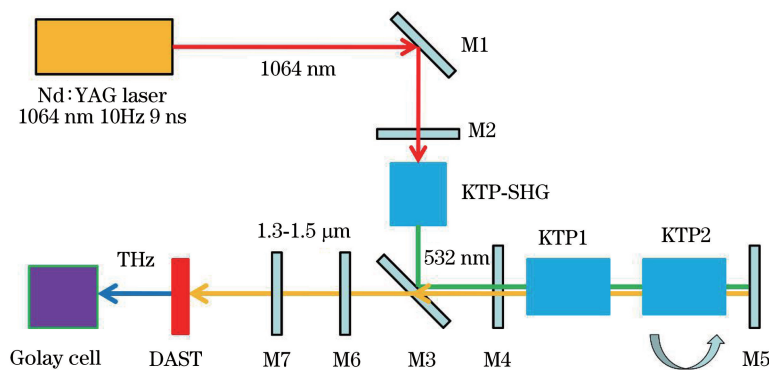


图 2 基于 DAST 晶体的差频 THz 辐射源实验装置

Fig. 2 Experimental setup of THz radiation source based on DAST crystal via different frequency generation

3 分析与讨论

3.1 DAST 晶体光学性能表征

DAST 晶体饱和生长溶液质量浓度不同,提供给晶体生长所需的驱动力也就不同,晶体各轴向及层状生长速率的差异使得晶体形态有所区别。3 种不同饱和生长溶液质量浓度下制备的 DAST 晶体如图 3 所示。质量浓度为 4.0 g/100 mL 时制备的

DAST 晶体最接近理想晶型,晶体呈块状结构,可以明显观测到(001)、(00 $\bar{1}$)、(111)和(110)面,但晶体表面存在一些高低不平的凹陷,这是由于在较大的晶体生长驱动力下,晶体表面容易二次成核形成层晶结构,如图 3(c)所示。质量浓度为 3.5 g/100 mL 时制备的 DAST 晶体表面相对光滑,晶体呈块状结构,如图 3(b)所示。而低质量浓度生长溶液(3.0 g/100 mL)制备出来的晶体,由于晶体生长驱动力较

小,晶体各轴向及层状生长速率较低,只能观察到明显的(001)和(00 $\bar{1}$)面,如图 3(a)所示。对晶体形态与生长尺寸的分析可知,增大饱和生长溶液质量浓度可以有效提高晶体各轴向及层状生长速率。

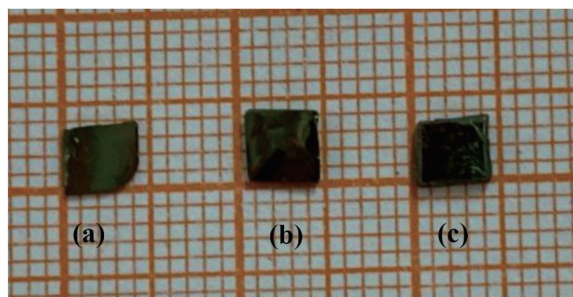


图 3 DAST 晶体照片图。(a)质量浓度为 3.0 g/100 mL, 尺寸为(4×3.5×0.35) mm³; (b)质量浓度为 3.5 g/100 mL, 尺寸为(4×4×0.38) mm³; (c)质量浓度为 4.0 g/100 mL, 尺寸为(4.5×3.5×0.4) mm³

Fig. 3 Photographs of DAST crystal. (a) Mass concentration is 3.0 g/100mL, size is (4×3.5×0.35) mm³; (b) mass concentration is 3.5 g/100 mL, size is (4×4×0.38) mm³; (c) mass concentration is 4.0 g/100 mL, size is (4.5×3.5×0.4) mm³

采用光学显微镜(德国 IMAGINGSOURCE)对 DAST 晶体(001)面进行显微观察,其结果如图 4 所示。质量浓度为 3.0 g/100 mL 时制备的 DAST 晶

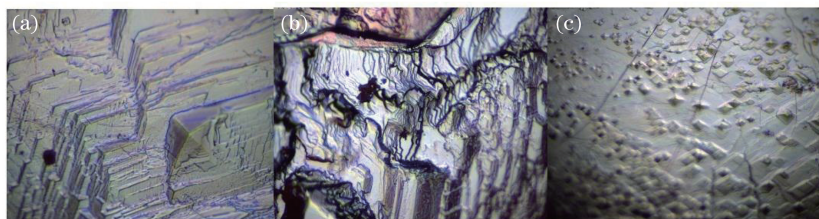


图 4 DAST 晶体(001)面的显微成像图。(a)质量浓度为 3.0 g/100 mL; (b)质量浓度为 3.5 g/100 mL; (c)质量浓度为 4.0 g/100 mL

Fig. 4 Microscopic images of the (001) plane of DAST crystal. (a) Mass concentration is 3.0 g/100 mL; (b) mass concentration is 3.5 g/100 mL; (c) mass concentration is 4.0 g/100 mL

此外,还使用显微共焦拉曼光谱仪(LabRAM HR Evolution)对 DAST 晶体的拉曼光谱进行了测量,其结果如图 5 所示。根据晶体的晶格振动特性,对拉曼光谱进行分析^[28-29]: 1347 cm⁻¹ 对应对称 CH₃ 振动模式的拉曼特征峰;乙烯基中 C=C 双键的拉曼特征峰位于 1322 cm⁻¹;苯环中 C—H 环内振动模式的拉曼特征峰分别位于 1215 cm⁻¹、1160 cm⁻¹和 1180 cm⁻¹;1050 cm⁻¹ 对应甲苯磺酸阴离子中 SO₃ 的对称伸缩振动模式的拉曼特征峰;苯环中 C—H 环外振动模式的拉曼特征峰分别位于

体表面相对干净,杂质较少,同时可以观察到多条平行排列的二维生长台阶,验证了晶体的二维成核生长机制,如图 4(a)所示。质量浓度为 3.5 g/100 mL 时制备的 DAST 晶体表面中,我们可以观察到一条明显的裂纹,如图 4(b)所示,该裂纹形成的原因可能是室温与生长溶液的温差较大,当 DAST 晶体取出后,晶体表面温度突然下降^[27]。质量浓度为 4.0 g/100 mL 时制备的 DAST 晶体表面中多条平行排列的二维生长台阶开始减少,这是由于该质量浓度下晶体生长的驱动力过大,当晶体呈二维成核生长时,成核扩展的生长层还没有结束,另外一个新的生长层就已经开始出现,多层二维生长台阶逐渐向单层演化,此外,晶体表面凹凸不平,还存在许多大小不一的包裹物,晶体质量相对较差,如图 4(c)所示。对比 3 种不同质量浓度饱和生长溶液制备的 DAST 晶体(001)面光学显微图像发现:当晶体的生长溶液质量浓度越大时,提供给晶体生长的驱动力也就越大,这使得晶体生长溶液体系不稳定,容易受到外界环境如振动、温度等因素的影响,晶体各轴向及层状生长速率的差异较大,晶体层状生长界面粗糙,当体系中的杂质较多时,容易在晶体表面成核,形成包裹物,影响晶体质量;但当生长溶液质量浓度过小时,晶体在生长过程中 DAST 分子易堆积、受阻,也可能形成错位等缺陷。

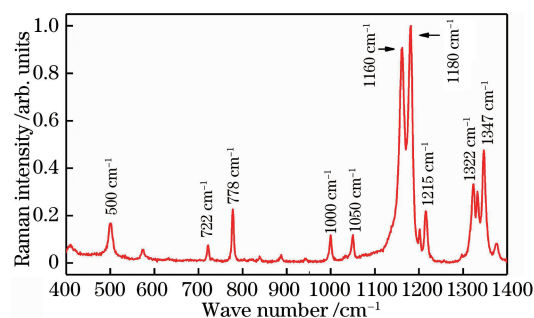


图 5 DAST 晶体的拉曼光谱

Fig. 5 Raman spectrum of DAST crystal

1000 cm^{-1} 、 778 cm^{-1} 、 722 cm^{-1} 对应苯环的伸缩振动模式的拉曼特征峰; CH_3 的不对称振动模式的拉曼特征峰位于 575 cm^{-1} ;而 500 cm^{-1} 对应 SO_3 的转动模式的拉曼特征峰。

3.2 基于 DAST 晶体的差频可调谐 THz 辐射源

近红外可调谐双波长泵浦光由两块 KTP 晶体组成的 OPO 产生。固定其中一块 KTP 晶体,在 532 nm 倍频光的泵浦下将产生 1359.84 nm 的信号光;由电控振镜(Cambridge technology, 6230 H)控制另外一块 KTP 晶体的旋转角度,改变其相位匹配角将产生波长在 $1.3\sim 1.5\text{ }\mu\text{m}$ 范围内可调谐的信号光。根据 II 类相位匹配条件($\text{o}+\text{e}\rightarrow\text{e}$),计算 KTP-OPO 产生 $1.3\sim 1.5\text{ }\mu\text{m}$ 信号光的相位匹配角,其结果如图 6(a)所示。从图 6(a)中可以看出,要想得到 $1.3\sim 1.5\text{ }\mu\text{m}$ 的信号光,KTP 晶体的切角 θ 应该在 $60^\circ\sim 68^\circ$ 之间,本研究所使用的 KTP 晶体

切角 θ 为 65° ,通过旋转晶体,可以满足基于 DAST 晶体的宽带 THz 辐射源对泵浦光波长调谐范围的要求。采用电控振镜来旋转 KTP 晶体,可以实现信号光的快速调谐,其施加电压与输出信号光波长如图 6(b)所示。通过自编的 Labview 程序控制电压的大小以及施加的时间,1 min 中内可以实现 KTP 晶体 10° 的旋转,其对应的信号光可以在 $1.3\sim 1.5\text{ }\mu\text{m}$ 范围内快速调谐。KTP-OPO 的输出特性如图 6(c)所示,当 532 nm 的每个脉冲泵浦光能量为 95.4 mJ 时,最大输出双波长能量为 15.02 mJ ,转换效率为 15.74% ,满足差频源对泵浦光能量的要求。此外,还使用光谱仪(Yokogawa, AQ6375)对 KTP-OPO 产生的双波长信号光的调谐特性进行测量,如图 6(d)所示。从双波长信号光的调谐特性曲线得出,双波长信号光的线宽达到 0.43 nm ($\sim 70\text{ GHz}$)。

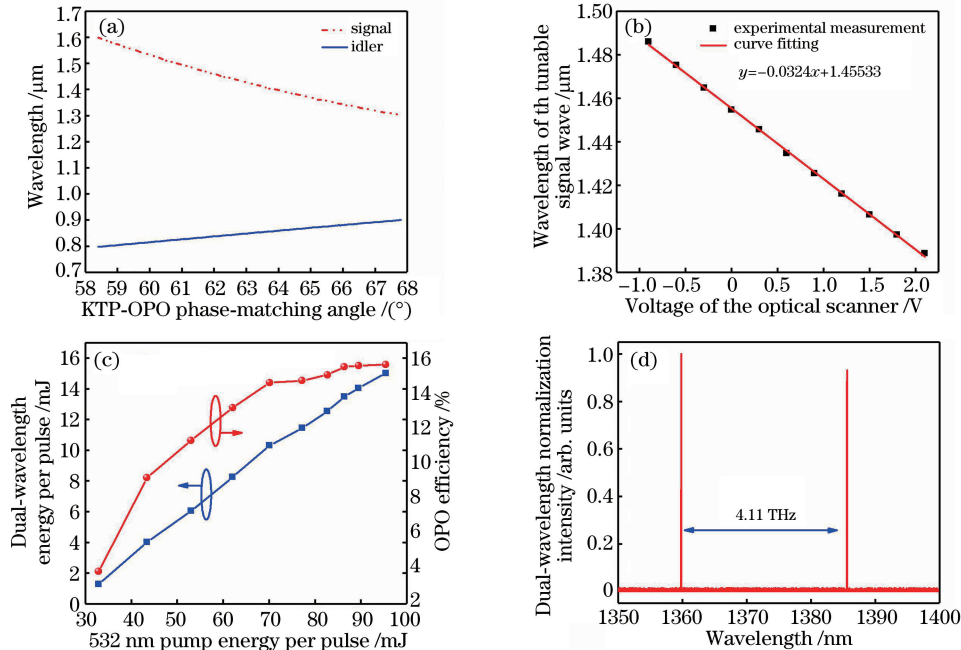


图 6 KTP-OPO 输出性能。(a) KTP-OPO 相位匹配角与信号光、闲频光输出波长的关系;(b) 振镜施加电压与输出信号光波长的关系;(c) KTP-OPO 的双波长泵浦光输出性能;(d) KTP-OPO 的双波长调谐特性

Fig. 6 Output performance of KTP-OPO. (a) Relationship between phase-matching angle of KTP-OPO and the output wavelength of signal light and idler light; (b) relationship between voltage of optical scanner and the output wavelength of signal light; (3) dual wavelength pump light output characteristic of KTP-OPO; (4) dual-wavelength tunability characteristic of KTP-OPO

采用 0 类相位匹配外腔差频和电控振镜快速扫描技术,获得 3 种不同质量浓度生长 DAST 晶体的差频 THz 输出谱,结果如图 7 所示。在低频 THz 波段,由于 $3.0\text{ g}/100\text{ mL}$ 质量浓度下制备的 DAST 晶体表面相对平整且杂质较少,晶体光谱透过率高,因此 THz 波输出能量较高。随着输出频率的增加,

3 种不同质量浓度下制备的 DAST 晶体差频产生的 THz 波输出能量的差异性逐渐减小。根据黑色聚乙烯的衰减系数和 Golay cell 校准值,计算 DAST 晶体在 $0.1\sim 20.0\text{ THz}$ 范围内各频点处的 THz 输出能量。当双波长每个脉冲泵浦光能量为 15 mJ 时,在 18.9 THz 处,THz 波的最大输出能量达到

3.59 μJ , 转换效率为 2.39×10^{-4} 。相比于 DASC、DASB 等晶体, DAST 晶体在低频段的吸收相对较小, 因此在低频波段范围内差频输出强度要高于同等条件下 DASC、DASB 晶体的差频输出强度^[30]。由 DAST 晶体的宽带 THz 输出谱可知, 其宽带 THz 辐射输出曲线并不平坦, 在 1.1、5.2、7.1、8.6、12.5、13.9、15.3、17.4 THz 以及 19.8 THz 处具有明显的输出谷点。对 DAST 晶体的晶格振动分析^[31]可知: 晶体在 1.1 THz 处的吸收是因为 DAST 晶体阴阳离子对的横向光学声子振动所致; 5.2 THz 和 13.9 THz 处为吡啶阳离子乙烯基上的 C—H 转动和振动吸收; 7.1 THz 和 12.5 THz 处为苯环的转动和振动吸收; 15.3 THz 处为 SO_3 的振动吸收; 17.4 THz 处为甲基 CH_3 振动吸收; 19.8 THz 处的吸收是因为黑色聚乙烯过滤器的强吸收所致。DAST 晶体的这些晶格振动模式的振动频率位于 THz 波段, 因此 THz 波与晶格振动模之间存在共振吸收, 这会导致 DAST 晶体在以上频率处对 THz 波的吸收较大, 最终导致输出谷点; 至于 8.6 THz 处的吸收, 并没有生色团的振动模式位于此频率, 推断其产生强吸收的原因是 DAST 晶体的多种晶格振动的综合作用。

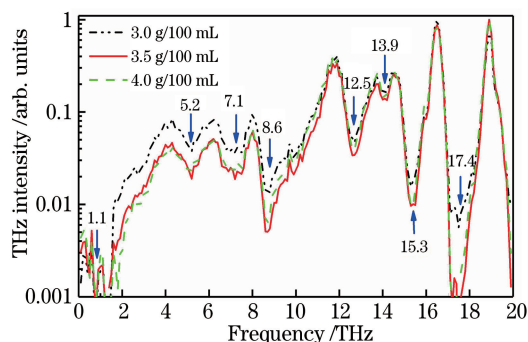


图 7 基于 DAST 晶体的宽带 THz 输出谱

Fig. 7 Broadband THz output spectrum based on DAST crystal

4 结 论

基于自发成核法自行生长的有机 DAST 晶体, 实现了宽带可调谐 THz 辐射输出。通过对晶体形态学以及(001)面显微成像分析发现, 增大晶体饱和生长溶液质量浓度可以有效提高晶体层状生长速率, 但晶体生长的多层二维台阶容易向单层演化; 基于 DAST 晶体的拉曼光谱, 对其生色团振动及转动特性进行分析; 采用 $1.3 \sim 1.5 \mu\text{m}$ 的高能量、可调谐双波长激光为泵浦光, 基于 0 类相位匹配外腔差频

和电控振镜快速扫描技术, 获得了宽带 THz 波输出, 调谐范围为 $0.1 \sim 20.0 \text{ THz}$, 在 18.9 THz 处, 每个脉冲最大输出能量达到 3.59 μJ , 转换效率为 2.39×10^{-4} ; 基于宽带 THz 输出谱分析发现, DAST 晶体对 THz 波的吸收主要是因为晶格振动引起的。

参 考 文 献

- [1] Amenabar I, Lopez F, Mendikute A. In introductory review to THz non-destructive testing of composite mater [J]. Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves, 2013, 34(2): 152-169.
- [2] Pelusi M, Vo T D, Luan F, et al. Terahertz bandwidth RF spectrum analysis of femtosecond pulses using a chalcogenide chip[J]. Optics Express, 2009, 17(11): 9314-9322.
- [3] Chen H, Chen T H, Tseng T F, et al. High-sensitivity *in vivo* THz transmission imaging of early human breast cancer in a subcutaneous xenograft mouse model [J]. Optics Express, 2011, 19(22): 21552-21562.
- [4] Grachev Y V, Liu X R, Putlin S E, et al. Wireless data transmission method using pulsed THz sliced spectral supercontinuum [J]. IEEE Photonics Technology Letters, 2018, 30(1): 103-106.
- [5] Fischer M, Walther M, Jepsen P U. Far-infrared vibrational modes of DNA components studied by terahertz time-domain spectroscopy [J]. Physics in Medicine and Biology, 2002, 47(21): 3807-3814.
- [6] 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.
- [7] 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.
- [8] Trubnick S E, Tochitsky S Y, Joshi C. Fabrication and characterization of Teflon-bonded periodic GaAs structures for THz generation [J]. Optics Express, 2009, 17(4): 2385-2391.
- [9] Rowley J D, Pierce J K, Brant A T, et al. Broadband terahertz pulse emission from ZnGeP_2 [J]. Optics Letters, 2012, 37(5): 788-790.
- [10] Han P Y, Tani M, Pan F, et al. Use of the organic crystal DAST for terahertz beam applications [J]. Optics Letters, 2000, 25(9): 675-677.
- [11] Ruiz B, Jazbinsek M, Günter P. Crystal growth of

- DAST[J]. *Crystal Growth & Design*, 2008, 8(11): 4173-4184.
- [12] Jazbinsek M, Mutter L, Günter P. Photonic applications with the organic nonlinear optical crystal DAST [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2008, 14(5): 1298-1311.
- [13] Sohma S, Takahashi H, Taniuchi T, et al. Organic nonlinear optical crystal DAST growth and its device applications[J]. *Chemical Physics*, 1999, 245(1/2/3): 359-364.
- [14] Jagannathan K, Kalainathan S. Growth and characterization of 4-dimethylamino-N-methyl 4-stilbazolium tosylate (DAST) single crystals grown by nucleation reduction method [J]. *Materials Research Bulletin*, 2007, 42(11): 1881-1887.
- [15] Tsunesada F, Iwai T, Watanabe T, et al. High-quality crystal growth of organic nonlinear optical crystal DAST[J]. *Journal of Crystal Growth*, 2002, 237/238/239: 2104-2106.
- [16] Hameed A S H, Yu W C, Chen Z B, et al. An investigation on the growth and characterization of DAST crystals grown by two zone growth technique [J]. *Journal of Crystal Growth*, 2005, 282(1/2): 117-124.
- [17] Adachi H, Takahashi Y, Yabuzaki J, et al. Growth of high quality nonlinear optical crystal 4-dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium tosylate (DAST)[J]. *Journal of Crystal Growth*, 1999, 198/199: 568-571.
- [18] Kawase K, Mizuno M, Sohma S, et al. Difference-frequency terahertz-wave generation from 4-dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium-tosylate by use of an electronically tuned Ti:sapphire laser[J]. *Optics Letters*, 1999, 24(15): 1065-1067.
- [19] Kawase K, Hatanaka T, Takahashi H, et al. Tunable terahertz-wave generation from DAST crystal by dual signal-wave parametric oscillation of periodically poled lithium niobate[J]. *Optics Letters*, 2000, 25(23): 1714-1716.
- [20] Suizu K, Miyamoto K, Yamashita T, et al. High-power terahertz-wave generation using DAST crystal and detection using mid-infrared powermeter [J]. *Optics Letters*, 2007, 32(19): 2885-2887.
- [21] He Y, Wang Y, Xu D, et al. High-energy and ultra-wideband tunable terahertz source with DAST crystal via difference frequency generation [J]. *Applied Physics B*, 2018, 124(1): 16.
- [22] Tokizane Y, Nawata K, Han Z L, et al. Tunable terahertz waves from 4-dimethylamino-N'-methyl-4'-stilbazolium tosylate pumped with dual-wavelength injection-seeded optical parametric generation [J]. *Applied Physics Express*, 2017, 10(2): 022101.
- [23] Tang M, Minamide H, Wang Y Y, et al. Tunable terahertz-wave generation from DAST crystal pumped by a monolithic dual-wavelength fiber laser [J]. *Optics Express*, 2011, 19(2): 779-786.
- [24] Shibuya T, Akiba T, Suizu K, et al. Terahertz-wave generation using a 4-dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium tosylate crystal under intra-cavity conditions [J]. *Applied Physics Express*, 2008, 1(4): 042002.
- [25] Nawata K, Abe T, Miyake Y, et al. Efficient terahertz-wave generation using a 4-dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium tosylate pumped by a dual-wavelength neodymium-doped yttrium aluminum garnet laser [J]. *Applied Physics Express*, 2012, 5(11): 112401.
- [26] Uchida H, Oota K, Minami T, et al. Generation of single-cycle terahertz pulse using Cherenkov phase matching with 4-dimethylamino-N'-methyl-4'-stilbazolium tosylate crystal [J]. *Applied Physics Express*, 2017, 10(6): 062601.
- [27] Sun Q, Teng B, Cao L F, et al. Study on the surface morphologies, defects and microhardness of DAST crystals[J]. *Journal of Synthetic Crystals*, 2015, 44(12): 3429-3432.
- 孙箐, 滕冰, 曹丽凤, 等. DAST 晶体的表面形貌、缺陷及显微硬度研究 [J]. *人工晶体学报*, 2015, 44(12): 3429-3432.
- [28] Bosshard C, Spreiter R, Degiorgi L, et al. Infrared and Raman spectroscopy of the organic crystal DAST: polarization dependence and contribution of molecular vibrations to the linear electro-optic effect [J]. *Physical Review B*, 2002, 66(20): 205107.
- [29] Vijayakumar T, Hubert Joe I, Reghunadhan Nair C P, et al. Electron-phonon coupling and vibrational modes contributing to linear electro-optic effect of the efficient NLO chromophore 4-(N, N-dimethylamino)-N-methyl-4'-toluene sulfonate (DAST) from their vibrational spectra[J]. *Journal of Raman Spectroscopy*, 2009, 40(1): 52-63.
- [30] Xu D G, Zhu X L, He Y X, et al. Advances in organic nonlinear crystals and ultra-wideband terahertz radiation sources [J]. *Chinese Optics*, 2019, 12(3): 535-558.
- 徐德刚, 朱先立, 贺奕斌, 等. 新型有机晶体及超宽带太赫兹辐射源研究进展[J]. *中国光学*, 2019, 12(3): 535-558.
- [31] Cunningham P D, Hayden L M. Optical properties of DAST in the THz range[J]. *Optics Express*, 2010, 18(23): 23620-23625.