

引用格式: ZHANG Ruiliang, PENG Suheng, WANG Bingwen, et al. Non-collinear Phase Matching Method of Stimulated Polariton Scattering Based on Cross-pumping[J]. Acta Photonica Sinica, 2023, 52(11):1114001

张瑞亮, 彭苏横, 王炳文, 等. 基于交叉泵浦的受激电磁耦子散射非共线相位匹配方法[J]. 光子学报, 2023, 52(11):1114001

# 基于交叉泵浦的受激电磁耦子散射非共线 相位匹配方法

张瑞亮<sup>1,2</sup>, 彭苏横<sup>1,2</sup>, 王炳文<sup>1,2</sup>, 耿利杰<sup>1,2</sup>, 翟玉生<sup>1,2</sup>, 张志峰<sup>1,2</sup>,  
翟凤潇<sup>1,2</sup>, 杨坤<sup>1,2</sup>

(1 郑州轻工业大学 物理与电子工程学院, 郑州 450000)

(2 郑州轻工业大学 河南省电磁信息功能材料重点实验室, 郑州 450000)

**摘要:**提出一种基于交叉泵浦实现受激电磁耦子散射的非共线相位匹配的方法, 获得频率可调谐的窄带 Stokes 光输出。根据参量放大理论, 推导出交叉泵浦受激电磁耦子散射的单程放大增益效率表达式, 揭示了交叉泵浦实现受激电磁耦子非共线相位匹配的物理机制。实验上采用泵浦光在晶体侧面全反射的方式构建交叉泵浦, 通过旋转晶体改变泵浦光全反射角, 实现相位匹配条件的改变和输出 Stokes 光频率的调谐。输出 Stokes 光线宽为 0.17 nm, 波长调谐范围为 1 068~1 076 nm。在 15 mJ 的泵浦能量下的输出能量为 1.07 mJ, 能量转化效率为 6.8%。本研究为非线性参量转换过程中的相位匹配方法提供一种方案参考, 尤其适用于泵浦光脉宽小于纳秒量级的短脉冲情况。

**关键词:**非线性光学; 非共线相位匹配; 交叉泵浦; 受激电磁耦子散射; 太赫兹波参量源

中图分类号: O437.4

文献标识码: A

doi: 10.3788/gzxb20235211.1114001

## 0 引言

太赫兹 (Terahertz, THz) 波<sup>[1]</sup>是电磁波谱中唯一还没有获得较全面研究并加以充分利用的波谱区间, 特别是高效的光源和探测手段还仍需进一步探索和研究<sup>[2]</sup>。基于受激电磁耦子散射 (Stimulated Polariton Scattering, SPS) 的非线性光学参量转换过程是高效率产生<sup>[3-8]</sup>和探测<sup>[9-11]</sup>太赫兹波的一种有效途径。电磁耦子是具有红外活性和拉曼活性晶体中的横向晶格振动模与电磁波相互耦合, 形成的具有连续振动频率的振动模。在近红外强泵浦激光的激发下, 参与 SPS 过程中的泵浦光子转化为特定色散频率的 Stokes 光子和相应频率的 THz 波。为了使 SPS 过程有效进行, 获持续受激辐射放大的 Stokes 光和 THz 波, 需要泵浦光、Stokes 光和 THz 波三者满足由能量守恒和波矢量守恒所决定的相位匹配关系。由于晶体中太赫兹波折射率与泵浦光、Stokes 光的折射率差距较大, 为满足波矢量守恒的要求, 可采取准相位匹配或非共线相位匹配的方式。2010 年, WALSH D A 等<sup>[12]</sup>实现了基于周期极化铌酸锂的准相位匹配腔内泵浦太赫兹波参量振荡器 (Terahertz-wave Parametric Oscillator, TPO), 产生了纳秒级 THz 波输出。准相位匹配有效增加三波相互作用距离, 降低振荡阈值, 但需要更换不同极化周期的晶体才能够获得大范围可调谐 THz 波输出, 频率调谐范围受限。2022 年, GAO Feilong 等<sup>[13]</sup>利用菱形环形腔构建了太赫兹波参量振荡器, 实现了泵浦光斑尺寸的增大和输出太赫兹波能量的提升, 参量振荡器具有结构简单、成本低等优势, 但 Stokes 光振荡的建立和放大需泵浦光脉冲具有较长的持续时间 (~5 ns 脉宽), 较长的泵浦光脉宽会引起晶体内受激布里渊散射的稳定建立, 严重限制 SPS 的效率, 制约太赫兹波参量振荡器效率的进一步提升<sup>[14]</sup>。2021 年, HIROAKI M 等<sup>[15]</sup>利用亚 ns 激光作为泵浦, 放大后的外腔可调谐半导体激光器作为种子源, 构建了种子注入太赫兹波参

基金项目: 国家自然科学基金 (Nos. 61905223, 11904327), 河南省科技发展计划 (No. 222102210319)

第一作者: 张瑞亮, rlz@zzuli.edu.cn

收稿日期: 2023-03-06; 录用日期: 2023-04-20

<http://www.photon.ac.cn>

量发生器,并在太赫兹波谱测量和成像方面实现了应用。种子注入太赫兹波参量发生器具有窄线宽窄、调谐方便等优势,并可消除受激布里渊散射的增益竞争,具有很高的效率。但所需的可调谐种子源成本较高,且一般功率较低,需配合激光放大器一起使用,造成整个系统不够紧凑,且成本昂贵。

本文提出一种新的实现SPS非共线相位匹配的方法,利用两束相互交叉的泵浦光同时激发SPS,只有传输方向沿两束泵浦光交叉中心的SPS过程满足共同的相位匹配条件,Stokes光能获得最大的参量增益,可进行持续参量放大。其余方向的SPS在一个满足相位匹配和一个不满足相位匹配的泵浦光共同作用下,参量增益受到抑制,不能获得有效的受激放大。此方法无需借助谐振腔即可实现SPS的非共线相位匹配,并可用于短脉冲激光泵浦情况,能够在较大频率范围内实现相位匹配条件的调节。

## 1 理论分析

### 1.1 非线性光学参量放大理论

参量放大的耦合波方程为<sup>[16]</sup>

$$\frac{dA_1}{dz} = \frac{2i\omega_1^2 d_{\text{eff}}}{k_1 c^2} A_3 A_2^* e^{i\Delta k z} \quad (1)$$

$$\frac{dA_2}{dz} = \frac{2i\omega_2^2 d_{\text{eff}}}{k_1 c^2} A_3 A_1^* e^{i\Delta k z} \quad (2)$$

式中, $z$ 为光的传输距离, $A_i$ 为光场的场强( $i=1,2,3$ ,分别代表闲频光、Stokes光和泵浦光), $\omega_i$ 为光的角频率, $k_i$ 为光的波矢, $\Delta k \equiv k_3 - k_1 - k_2$ 为非线性作用过程中的相位失配量, $c$ 为光速, $d_{\text{eff}}$ 为有效非线性系数。耦合波方程解的形式为

$$A_1(z) = \left[ A_1(0) \left( \cosh gz - \frac{i\Delta k}{2g} \sinh gz \right) + \frac{\kappa_1}{g} A_2^*(0) \sinh gz \right] e^{i\Delta k z/2} \quad (3)$$

$$A_2(z) = \left[ A_2(0) \left( \cosh gz - \frac{i\Delta k}{2g} \sinh gz \right) + \frac{\kappa_2}{g} A_1^*(0) \sinh gz \right] e^{i\Delta k z/2} \quad (4)$$

式中,

$$g = \left[ \kappa_1 \kappa_2^* - (\Delta k/2)^2 \right]^{1/2} \quad (5)$$

$$\kappa_i = \frac{2i\omega_i^2 d_{\text{eff}} A_3}{k_i c^2} \quad (6)$$

根据初始条件,Stokes光的初始入射场强 $A_2(0)$ 为0,则式(4)可以简化为

$$A_2(z) = \left[ \frac{\kappa_2}{g} A_1^*(0) \sinh gz \right] e^{i\Delta k z/2} \quad (7)$$

则产生的Stokes光的光强为

$$|A_2(z)|^2 = \frac{|\kappa_2|^2}{g^2} |A_1(0)|^2 \sinh^2 gz \quad (8)$$

考虑实际情况,当 $gz \gg 1$ 时,传输距离为 $l$ 的单程参量放大Stokes光强增益为

$$G(l) = \frac{|A_2(l)|^2}{|A_2(0)|^2} - 1 = \frac{\kappa_1 \kappa_2^*}{g^2} \sinh^2 gz \propto \exp(gz) \quad (9)$$

### 1.2 交叉泵浦SPS的波矢量守恒关系

交叉泵浦可以通过泵浦光在晶体侧面的全反射来实现,如图1所示。泵浦光以小入射角从长条晶体的端面入射,在晶体的侧面发生全反射,入射泵浦光和反射泵浦光构成交叉泵浦。

由于晶体内泵浦光和Stokes光之间的夹角很小,通常约为 $1^\circ$ ,所以参量相互作用距离可以近似认为是晶体的长度 $L$ 。由图1可以看出,晶体内不同位置处的非线性相互作用的泵浦条件是不同的。 $l_1$ 由入射泵浦光单独泵浦,其内自发的参量放大过程满足相位匹配; $l_3$ 由反射泵浦光单独泵浦,其内的Stokes光是由 $l_1$ 传输过来的,参量放大过程会存在一定的相位失配量 $\Delta k$ ;  $l_2$ 由两个泵浦光共同作用。

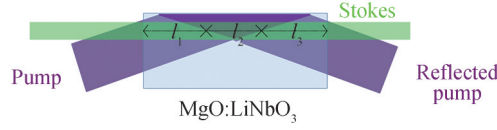


图1 利用泵浦光全反射实现交叉泵浦示意图  
Fig.1 Schematic diagram of cross-pumping with pump light total reflection

利用图2所示的相位匹配关系可以分析 $\Delta k$ 的大小。图中 $k_p$ 和 $k_{RP}$ 分别为入射和反射泵浦光的波矢, $k_s$ 为Stokes的波矢。当Stokes光沿两束泵浦光的交叉中心方向 $k_0$ 传输时,Stokes光与两束泵浦的夹角相同,所以构成的相位匹配关系相同,只是产生的THz波的传输方向不同而已,此时参量放大过程满足,即 $\Delta k=0$ 。若Stokes光沿着稍微偏离中心的方向 $k_s$ 传输,在 $l_1$ 范围内,初始产生的Stokes光的参量放大过程同样满足相位匹配,此时的参量增益系数为 $g_0=[\kappa_1\kappa_2^*]^{1/2}$ , $g_0$ 与泵浦光强 $I_p$ 成正比。但是,当 $k_s$ 传输到 $l_3$ 范围内时,由反射泵浦光提供增益,相位匹配条件发生了改变,此时 $\Delta k=0$ 的Stokes波矢量应该为 $k'_s$ 。相对于中心方向 $k_0$ ,在 $l_3$ 范围内 $k_s$ 与 $k_{RP}$ 发生参量作用的相位失配量为 $2\Delta k$ ,参量增益为 $g_{2\Delta k}=[\kappa_1\kappa_2^* - \Delta k^2]^{1/2}$ 。在在 $l_2$ 范围内,参量增益由两束泵浦光共同作用,为简单起见,假设此时的泵浦光强为 $2I_p$ ,并均摊到 $g_0$ 和 $g_{2\Delta k}$ 中,所以 $l_2$ 中的参量增益系数可表示为 $\sqrt{2}(g_0 + g_{2\Delta k})/2$ 。

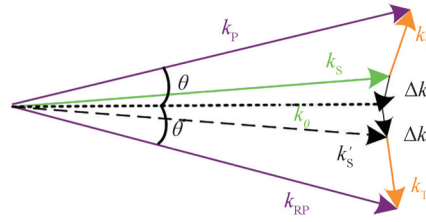


图2 交叉泵浦SPS波矢量守恒关系  
Fig.2 Conservation of wave vectors for cross-pumped SPS

### 1.3 交叉泵浦SPS实现非共线相位匹配的物理机制

当Stokes光穿过整个晶体时,单程参量增益可表示为

$$G(L) = G_P(l_1)G_{P+RP}(l_2)G_{RP}(l_3) = \exp\left\{2\left[g_0l_1 + \frac{\sqrt{2}(g_0 + g_{2\Delta k})l_2}{2} + g_{2\Delta k}l_3\right]\right\} \quad (10)$$

为分析简便,假定 $l_1 = l_2 = l_3 = L/3$ ,式(10)可以化简为

$$G(L) = \exp\left[(2 + \sqrt{2})(g_0 + g_{2\Delta k})L/3\right] \quad (11)$$

通过对比有无相位失配量情况下的单程参量增益,可得到增益效率的表达式为

$$\frac{G_{2\Delta k}(L)}{G_0(L)} = \frac{\exp\left[(2 + \sqrt{2})(g_0 + g_{2\Delta k})L/3\right]}{\exp\left[(2 + \sqrt{2})(g_0 + g_0)L/3\right]} = \exp\left[(2 + \sqrt{2})(g_{2\Delta k} - g_0)L/3\right] \quad (12)$$

当泵浦光强为 $I_p=200 \text{ MW/cm}^{-1}$ 时,增益中心2 THz处的参量增益系数约为 $g_0=8 \text{ cm}^{-1}$ ,利用式(12)可计算得到相位失配量 $\Delta k$ 对增益效率的影响,如图3所示。可以看出,一个微小的相位失配即可导致增益效率的急剧降低,当增益效率降低一半时的相位失配量约为 $3 \text{ cm}^{-1}$ ,对应的Stokes光的线宽为约0.026 nm。考虑泵浦光的线宽和光束发散,Stokes光的线宽会有一定的展宽。交叉泵浦方式相当于一个窄带滤波器,具有锁定SPS非共线相位匹配条件的作用。只有沿两束交叉泵浦光正中心传输时,Stokes光才能获得有效的参量放大,并具有较窄线宽。其余方向或频率的参量放大过程被抑制。通过调节两束泵浦光的交叉角度,可以实现SPS相位匹配条件的改变和Stokes光与THz波的频率调谐。

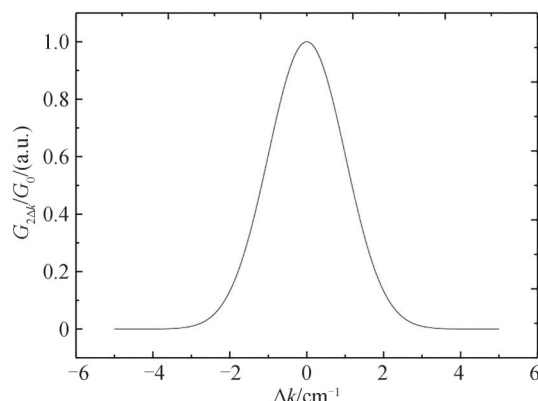


图3 增益效率随相位失配量 $\Delta k$ 的变化关系  
Fig.3 Gain efficiency versus phase mismatch  $\Delta k$

## 2 实验结果和讨论

### 2.1 实验装置

基于交叉泵浦实现SPS非共线相位匹配的实验装置如图4所示。泵浦源为德国InnoLas公司生产的SpitLight1200型Nd:YAG固体激光器。激光重复频率设置为2 Hz,输出激光的脉宽为7 ns,光斑为平顶超高斯模式,实验装置处在室温25°左右的环境中,泵浦光线宽约为0.25 nm。泵浦光斑的直径通过望远镜系统Telescope压缩为1 mm,泵浦光能量通过 $\lambda/2$ 波片与偏振分束器(Polarization Beam Splitter, PBS)构成的偏振分束装置进行调节。非线性晶体为7(x) cm $\times$ 5(y) cm $\times$ 0.5(z) cm, 5%mol掺杂的MgO:LiNbO<sub>3</sub>晶体,晶体端面(yz)镀有1 060~1 090 nm的增透膜。泵浦光以一定小角度掠入射到晶体侧面发生全反射,实现交叉泵浦。旋转晶体的角度,实现泵浦光交叉角度和相位匹配条件的改变,从而实现Stokes光的频率调谐。Stokes光的波长及线宽利用光谱仪(Optical Spectrum Analyzer, OSA)测量。

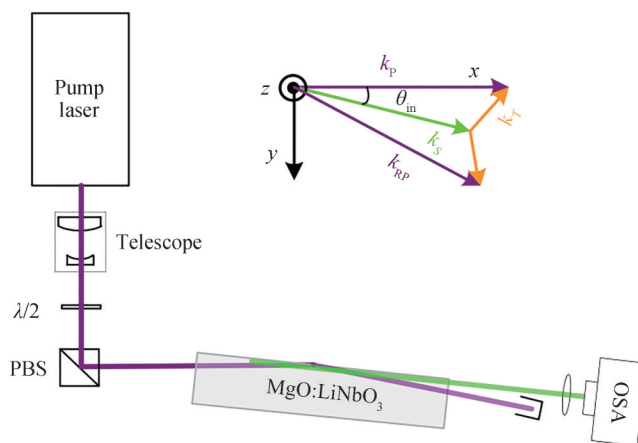


图4 交叉泵浦SPS实验结构示意图  
Fig.4 Schematic diagram of the experimental structure of cross-pumping SPS

### 2.2 交叉泵浦SPS的光谱特性研究

图5为利用宽波段光谱仪(Ocean Optics, HR4000CG)探测到的Stokes光谱,其中图5(a)中泵浦光直接穿过晶体,没有形成交叉泵浦,图5(b)为泵浦光在晶体侧面发生全反射,构成交叉泵浦时的情况,定义泵浦光和晶体侧面之间的夹角为交叉泵浦角。从图中可以看出,当泵浦光直接穿过晶体时,SPS输出的Stokes光是宽谱的,整个增益范围内的散射频率成分都会得到自发的受激辐射放大;而当存在相互交叉的基频泵浦光场时,输出的Stokes光是窄带的,波长与交叉泵浦角相关。图5说明交叉泵浦可以实现SPS的非共线相位匹配,获得窄带的Stokes光输出,并可通过改变泵交叉泵浦角,实现SPS非共线相位匹配条件的改变和

Stokes光的频率调谐。

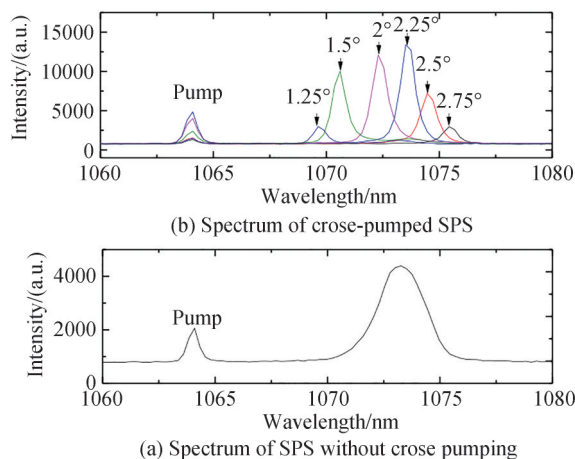


图5 不同泵浦条件下SPS输出Stokes光谱

Fig. 5 Output Stokes spectra of SPS under different pump conditions

图6显示了由光谱分辨率约为0.017 nm (5 GHz)的高分辨率激光光谱分析仪(Resolution Spectra Systems)在1072 nm处测量的Stokes光谱,测得Stokes光的线宽为0.17 nm (45 GHz)。在交叉泵浦条件下,SPS的有效增益宽度被压缩在很窄的频率范围内。分别在距离晶体输出面20 cm和45 cm处测量了Stokes光在横( $y$ )、纵( $z$ )向的光斑尺寸,直径分别为1.26 mm( $x_1$ )、2.50 mm( $z_1$ )和1.49 mm( $x_2$ )、5.38 mm( $z_2$ )。所以Stokes光在横向的发散角为 $0.053^\circ$ ,在纵向的发散角为 $0.66^\circ$ 。Stokes光横向发散角较小,是因为其光束的空间发散性和线宽紧密相关,当Stokes光线宽较窄时,其光束发散角也更小。由铌酸锂晶体SPS的色散特性可得,当相位匹配角变化 $1^\circ$ 时,Stokes光波长的变化量约为3 nm,理论上0.17 nm的Stokes光线宽,对应的光束发散角约为 $0.057^\circ$ ,和实际测量结果接近。纵向的光束发散角较大是由于Stokes光在纵向耦合输出的空间尺寸较小引起的,利用柱透镜可以将其准直。

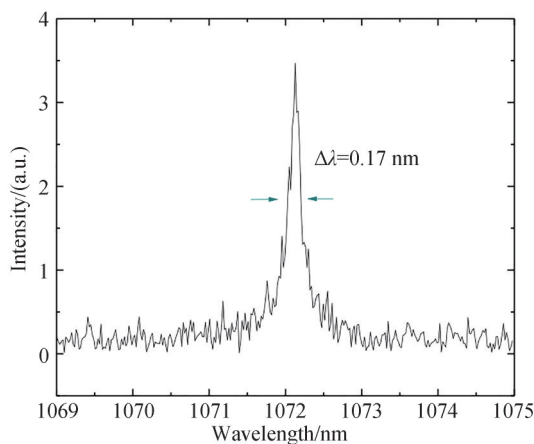


图6 交叉泵浦SPS输出Stokes光的线宽

Fig. 6 The linewidth of Stokes light output by cross-pumped SPS

当交叉泵浦角度为 $2^\circ$ 时,在剩余泵浦光和Stokes光处测得的光谱如图7所示。除了正常的1064 nm泵浦光和1072 nm Stokes光的光谱成分外,还发现在一阶Stokes光里出现了1088 nm的三阶Stokes的光谱成分和1056 nm的反Stokes光的成分,在剩余泵浦光里出现了1080 nm的二阶Stokes光谱成分。高阶Stokes光的出现是由于SPS发生级联效应产生的,在交叉泵浦太赫兹参量振荡器研究中同样也发现了类似的现象,并给出了详细的解释<sup>[17]</sup>。

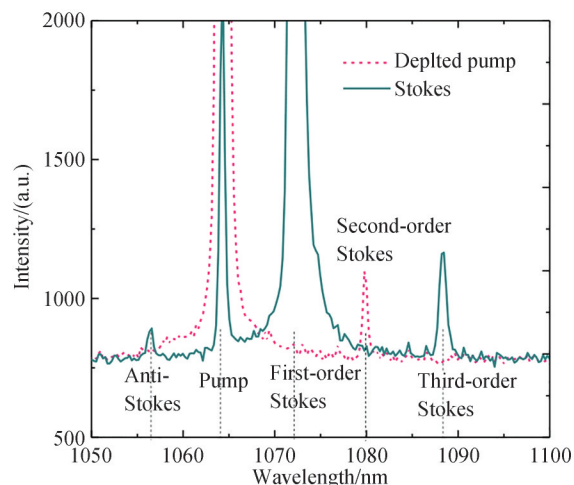


图7 交叉泵SPS在Stokes光和剩余泵浦光处的光谱成分

Fig.7 Spectral composition of cross-pump SPS at Stokes light and residual pump light

### 2.3 交叉泵浦SPS的频率调谐特性

Stokes光波长和交叉泵浦角之间的关系如图8所示,晶体侧面 $xz$ 与泵浦光平行时为 $0^\circ$ ,两束泵浦光的交叉角度是晶体旋转角度的2倍。图中的点为光谱仪对Stokes光波长的测量值,曲线为铌酸锂晶体在1064 nm激光激发下发生SPS的角度调谐特性的理论曲线。从图中可以看出,实际测量结果与理论曲线非常相符,说明利用交叉泵浦实现SPS的相位匹配遵循非线性光学相位匹配的基本理论。

当泵浦光能量为10 mJ,相应的功率密度为 $175 \text{ MW}/\text{cm}^2$ 时,交叉泵浦SPS的Stokes光调谐输出特性如图9所示。通过改变交叉泵浦角,Stokes光在1068~1076 nm范围可连续调谐输出,并在1071 nm处附近获得最大输出能量,和SPS增益曲线的中心波长较为接近。在波长小于1069 nm和大于1074 nm时,由于相互作用距离的缩短及增益系数的减小,导致Stokes光的输出能量也相应降低。

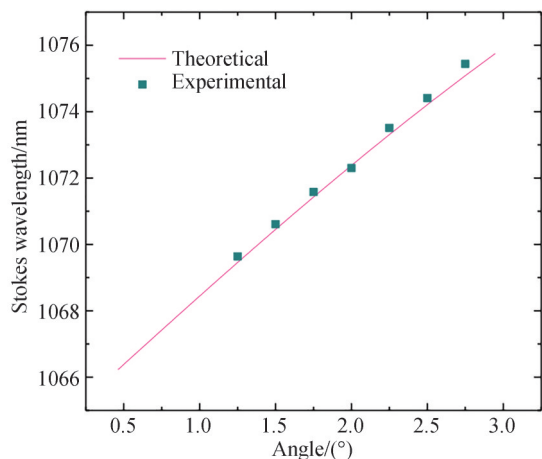


图8 交叉泵浦SPS的角度调谐特性

Fig.8 Angle tuning characteristics of the cross-pumped SPS

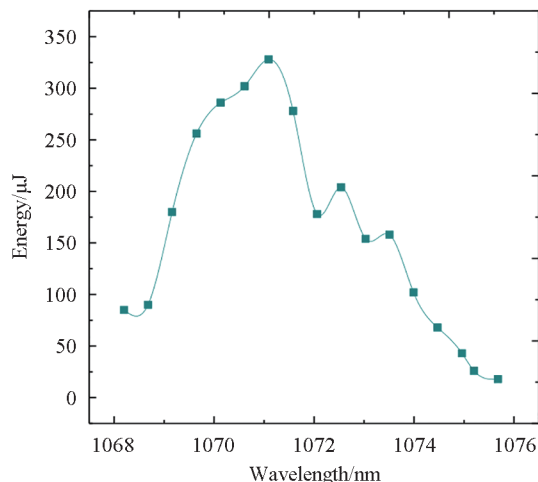


图9 交叉泵浦SPS输出Stokes光的调谐输出特性

Fig.9 Tuning output characteristics of Stokes light output from cross-pumped SPS

### 2.3 交叉泵浦SPS的能量输出特性

Stokes光的脉宽与泵浦光能量有关,如图10所示。在一定范围内,入射泵浦光能量越大,Stokes光的脉宽越宽。当泵浦光能量从8 mJ增大到14 mJ时,Stokes光脉宽从2 ns增大到4 ns。实验中,示波器对Stokes光时域波形的记录由泵浦光脉冲触发,所以Stokes光在时间轴上的起点位置代表其相对于泵浦光的延时,即Stokes光的建立时间。可以看出,泵浦光脉冲能量越大,Stokes光的建立时间越短。这是由于泵浦光脉

冲能量大,发生受激散射所需的阈值泵浦强度会比较靠前达到,而且泵浦脉冲高于阈值泵浦强度的持续时间会较长,所以 Stokes 光的建立时间缩短,同时脉宽展宽。

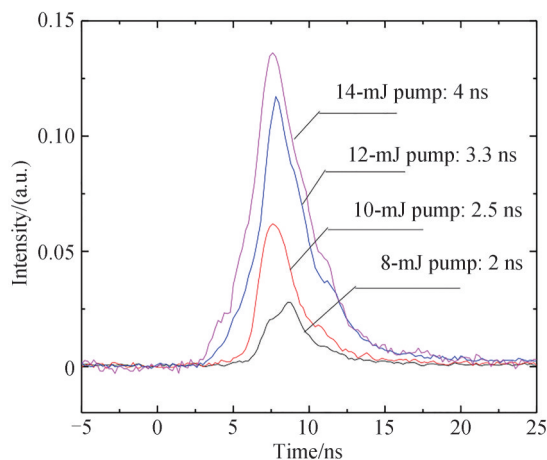


图 10 不同泵浦能量下的 Stokes 光的时域波形  
Fig.10 Waveform of Stokes light at different pump energies

Stokes 光在 1 071 nm 处的输出能量随泵浦光能量的变化关系如图 11 所示,产生 Stokes 光的阈值泵浦能量约为 7 mJ,对应泵浦强度为  $120 \text{ MW/cm}^{-1}$ 。Stokes 光能量随着泵浦能量的增大而增大,当泵浦能量为 15 mJ 时,Stokes 光的能量为 1.02 mJ,能量转换效率为 6.8%。并且随着泵浦能量的增加,在太赫兹波参量振荡器中出现的能量饱和现象并没有发生。由于没有谐振腔的反馈作用,Stokes 光的转化效率较低,相应的级联效应效率更低,所以 Stokes 光能量在较低泵浦光强下呈现出随泵浦能量的增大而加速增大的现象,不会发生饱和。为了避免晶体损伤,泵浦能量没再继续增大。

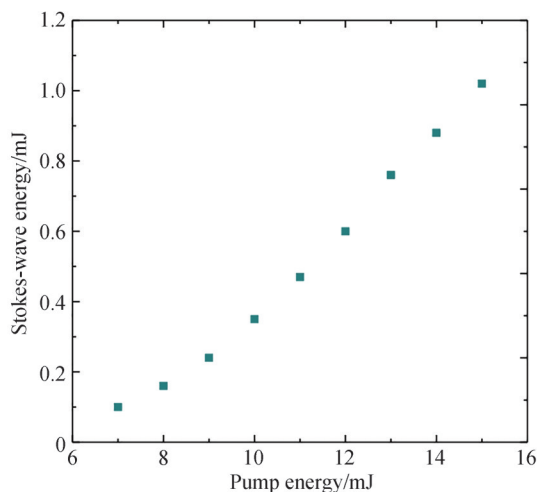


图 11 Stokes 光能量随泵浦光能量的变化关系  
Fig.11 Stokes light energy versus pump light energy

图 12 显示了有、无 Stokes 光谱谐振腔时交叉泵浦 SPS 输出 THz 波能量的对比情况。其中图 11(a)为两种情况下产生 THz 波能量的输入输出特性,图 11(b)为输出 THz 波的能量对比。晶体内产生的 THz 波利用 Si 棱镜阵列耦合输出。可以看出,相对于有 Stokes 光谱谐振腔进行能量反馈的 SPS,无谐振腔时的 THz 波输出能量较低,约为前者的百分之几,但是能量占比会随着泵浦光强度的增大而快速增大。由于实验采用 ns 量级的泵浦光,所以泵浦功率不能太高,否则会损伤晶体。但是当采用亚 ns 的短脉冲泵浦光时,泵浦功率可以达到 GW 量级。由参量放大的基本原理可知,参量增益随泵浦功率的增大而增大,当泵浦强度为  $2 \text{ GW/cm}^2$  时(200 ps 泵浦光可达到的泵浦强度),SPS 的参量增益系数约为  $50 \text{ cm}^{-1}$ ,比 ns 激光泵浦时( $0.3 \text{ GW/cm}^2$ )的

$15\text{ cm}^{-1}$ 提高了超过3倍,在同样的增益长度下,Stokes光将被放大得更快,可获得更高的Stokes光和THz波输出效率。在亚ns的短脉冲泵浦下,可以预期交叉泵浦SPS效率的进一步大幅度提升。

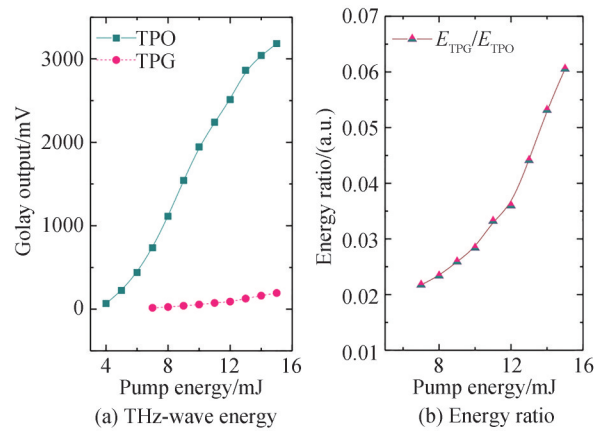


图12 有无谐振腔时交叉泵浦SPS输出THz波的能量对比

Fig.12 Comparison of THz-wave energy output by cross-pumped SPS with or without resonator

### 3 结论

本文提出了一种利用交叉泵浦的方式实现SPS非共线相位匹配的方法,获得了可调谐的窄带Stokes光输出。Stokes光的调谐范围为 $1\ 068\sim 1\ 076\text{ nm}$ ,线宽为 $0.17\text{ nm}$ ,在 $15\text{ mJ}$ 的泵浦能量下获得最高输出能量为 $1.07\text{ mJ}$ ,对应能量转化效率为 $6.8\%$ ,交叉泵浦SPS的效率随泵浦强度的增大而快速提升。

本研究中,由于非线性作用距离较短,泵浦强度较低,所以输出Stokes光和THz波的能量转化效率并不高。利用薄片晶体可增大泵浦光的全反射次数,增加非线性作用距离;采用亚ns激光泵浦可将泵浦强度提升至GW量级,增大增益系数,可以预期获得较为可观的转化效率;直接利用两束泵浦光相互交叉,可避免反射泵浦光由于全反射而引起的光斑形变和方向改变造成交叉泵浦结构的破坏,可进一步压缩Stokes光的线宽。后续研究将从这几个方面入手。

#### 参考文献

- [1] YU Zhiqiang, SUN Lu, ZHANG Nan, et al. Anti-correlated plasma and thz pulse generation during two-color laser filamentation in air[J]. *Ultrafast Science*, 2022; 9853053.
- [2] TIAN Ye, GUO Silin, ZENG Yushan, et al. High-field terahertz sources and matter manipulation (invited)[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2020, 49(11): 1149001.  
田野, 郭丝霖, 曾雨珊, 等. 强场太赫兹光源及其物质调控研究(特邀)[J]. *光子学报*, 2020, 49(11): 1149001.
- [3] 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.
- [4] 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.
- [5] GAO Feilong, ZHANG Xingyu, CONG Zhenhua, et al. Terahertz parametric oscillator with the surface-emitted configuration in RbTiOPO4 crystal[J]. *Optics and Laser Technology*, 2018, 104: 37-42.
- [6] XU Degang, WANG Yuye, HU Changhao, et al. Optical terahertz radiation sources and terahertz application in traumatic brain injury[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(19): 1914002.  
徐德刚, 王与焯, 胡常灏, 等. 光学太赫兹辐射源及其在脑创伤检测中的应用[J]. *中国激光*, 2021, 48(19): 1914002.
- [7] WANG Zecheng, YANG Zhongming, ZHANG Xingyu, et al. Research progress of terahertz parametric sources [J]. *Chinese Journal of Quantum Electronics*, 2023, 40(2): 141-163.  
王泽城, 杨志明, 张行愚, 等. 太赫兹参量源研究进展[J]. *量子电子学报*, 2023, 40(2): 141-163.
- [8] MORIGUCHI Y, YU T, TAKIDA Y, et al. Frequency-agile injection-seeded terahertz-wave parametric generation[J]. *Optics Letters*, 2020, 45(1): 77-80.
- [9] WANG Yuye, NIE Gang, HU Changhao, et al. High-sensitive terahertz detection by parametric up-conversion using nanosecond pulsed laser[J]. *Chinese Physics B*, 2022, 31(2): 024204.
- [10] 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.
- [11] MINE S, KAWASE K, MURATE K. Real-time wide dynamic range spectrometer using a rapidly wavelength-switchable terahertz parametric source [J]. *Optics Letters*, 2021, 46(11): 2618-2621.
- [12] WALSH D A, BROWNE P G, DUNN M H, et al. Intracavity parametric generation of nanosecond terahertz radiation using quasi-phase-matching [J]. *Optics Express*, 2010, 18(13): 13951-13963.
- [13] GAO Feilong, XIE Yiyang, WANG Yiran, et al. Terahertz parametric oscillator with a rhombic ring-cavity [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2022, 61: 040901.
- [14] 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 & Technology*, 2017, 7(5): 617-620.
- [15] MINAMIDE H, NAWATA K, MORIGUCHI Y, et al. Injection-seeded terahertz-wave parametric generator with timing stabilized excitation for nondestructive testing applications [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2021, 92(9): 093002-093008.
- [16] SHEN Y R. *Nonlinear infrared generation* [M]. Springer-Verlag, 1977: 105-140.
- [17] ZHANG Ruiliang, GENG Lijie, ZHANG Zhifeng, et al. Widely tunable terahertz-wave parametric oscillator with a shallow surface cross-pump configuration [J]. *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 2021, 42: 851-862.

## Non-collinear Phase Matching Method of Stimulated Polariton Scattering Based on Cross-pumping

ZHANG Ruiliang<sup>1,2</sup>, PENG Suheng<sup>1,2</sup>, WANG Bingwen<sup>1,2</sup>, GENG Lijie<sup>1,2</sup>, ZHAI Yusheng<sup>1,2</sup>,  
ZHANG Zhifeng<sup>1,2</sup>, ZHAI Fengxiao<sup>1,2</sup>, YANG Kun<sup>1,2</sup>

(1 *School of Physics & Electronic Engineering, Zhengzhou University of Light Industry, Zhengzhou 450000, China*)

(2 *Henan Key Laboratory of Magneto-electronic Information Functional Materials, Zhengzhou University of Light Industry, Zhengzhou 450000, China*)

**Abstract:** Nonlinear optical parametric conversion process based on Stimulated Polariton Scattering (SPS) is an effective way to generate tunable terahertz waves and near-infrared Stokes light with high efficiency. In order to make the SPS process effective, non-collinear phase matching is used to keep the three waves in the crystal at the same phase velocity. Non-collinear phase-matched terahertz wave parametric sources mainly use parametric oscillators and seed-injected parametric generators to achieve frequency limitation and tuning. This paper proposes a new method to achieve non-collinear phase matching of SPS by using two intersecting pump beams to simultaneously excite SPS. The SPS along the transmission direction of the center of the intersection of the pump beams has the same phase matching relationship, and Stokes can obtain the maximum parametric gain and continuous amplification. The SPS in other directions is suppressed by the combined action of a pump beam that satisfies phase matching and a pump beam that does not satisfy phase matching. This method can achieve non-collinear phase matching without relying on a resonant cavity and can be used for short-pulse laser pumping. The basic principle of parametric amplification is studied theoretically, and the gain formula of parametric amplification is derived. Taking cross-pumping based on total reflection of pump light on the side of the crystal as an example, the phase matching relationship of cross-pumping SPS is analyzed, and the phase mismatch of SPS in different transmission directions and the single-pass parametric gain expression of Stokes light are obtained. The gain efficiency curve is obtained through numerical calculation, revealing the physical mechanism of cross-pumping to achieve non-collinear phase matching of SPS. In the experiment, cross-pumping was achieved by grazing incidence of pump light on the side of the crystal at a certain angle to achieve total reflection. By rotating the angle of the crystal, the intersection angle of pump light and phase matching conditions are changed, thereby achieving frequency tuning of Stokes light and obtaining tunable narrow-band Stokes light output. The wavelength tuning range of Stokes light is 1 068~1 076 nm, and the highest output is obtained near 1 071 nm. The measured angle tuning characteristics are consistent with theoretical values, indicating that cross-pumping to achieve SPS phase matching follows the basic principles of nonlinear optical phase matching. The measured line width of Stokes light is 0.17 nm, the lateral divergence angle is

0.053°, and the longitudinal divergence angle is 0.66°. In the experiment, a cascading phenomenon similar to that in a cross-pumped terahertz parametric oscillator was found. The pulse width of Stokes light is related to the energy of the pump light. Within a certain range, the larger the incident pump light energy, the wider the pulse width of Stokes light and the shorter the establishment time. When the pump light energy increases from 8 mJ to 14 mJ, the pulse width of Stokes light increases from 2 ns to 4 ns. The relationship between the output energy of Stokes light and the incident pump light energy was measured. The threshold pump energy for producing Stokes light is about 7 mJ, corresponding to a pump intensity of 120 MW/cm<sup>-1</sup>. The highest Stokes light output energy is 1.07 mJ at a pump energy of 15 mJ, corresponding to an energy conversion efficiency of 6.8%, and there is no energy saturation phenomenon as the pump energy increases. Using a silicon prism array to couple out terahertz waves, the relationship between the output energy of THz waves and the pump light energy was measured and compared with the output THz wave energy of a shallow surface cross-pumped terahertz wave parametric oscillator with an external resonant cavity. It is found that the efficiency of cross-pumping SPS increases with increasing pump intensity. It can be expected that under sub-ns short-pulse pumping, due to the crystal's ability to withstand a pump intensity of 2 GW/cm<sup>-1</sup>, the gain coefficient can be increased several times, and the efficiency of cross-pumping SPS can be further greatly improved. This research provides a reference for phase matching methods in nonlinear optical processes, especially suitable for short-pulse situations where the pump light pulse width is less than sub-ns.

**Key words:** Nonlinear optics; Non-collinear phase matching; Cross pumping; Stimulated polariton scattering; Terahertz-wave parametric sources

**OCIS Codes:** 140.3070; 190.4410; 190.5890; 190.4970