

差频可调谐太赫兹技术的新进展

柴路 牛跃 栗岩锋 胡明列 王清月

Recent progress of tunable terahertz sources based on difference frequency generation

Chai Lu Niu Yue Li Yan-Feng Hu Ming-Lie Wang Qing-Yue

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 070702 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.070702

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.070702>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I7>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

慢波结构爆炸发射对高功率太赫兹表面波振荡器的影响

Influence of slow wave structure explosive emission on high-power surface wave oscillator

物理学报.2015, 64(15): 150702 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.150702>

0.14 THz 双环超材料慢波结构表面波振荡器数值研究

Numerical studies on a 0.14 THz coaxial surface wave oscillator with double-ring metamaterial slow wave structure

物理学报.2015, 64(7): 070702 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.070702>

欧姆损耗对太赫兹频段同轴表面波振荡器的影响

Effect of Ohmic loss on coaxial surface wave oscillator in terahertz band

物理学报.2015, 64(7): 070703 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.070703>

0.34 THz 大功率过模表面波振荡器研究

Study on 0.34 THz overmoded surface wave oscillator

物理学报.2015, 64(5): 050703 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.050703>

0.14 太赫兹同轴表面波振荡器研究

A 0.14 THz coaxial surface wave oscillator

物理学报.2014, 63(11): 110703 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.110703>

综述

## 差频可调谐太赫兹技术的新进展\*

柴路<sup>†</sup> 牛跃 栗岩锋 胡明列 王清月

(天津大学精密仪器与光电子工程学院超快激光研究室, 光电信息技术教育部重点实验室, 天津 300072)

(2015年12月22日收到; 2016年1月21日收到修改稿)

太赫兹技术在最近30年来得到快速发展,并在医学、生物、农业、材料、安检、通信、天文等领域得到广泛应用.从太赫兹源的频谱特性可以分为窄带(单频)太赫兹源和宽带太赫兹源.从频谱技术方面来说,相干的宽带和窄带太赫兹谱是一种互补性关系,具有各自的技术特点和应用范围.宽带太赫兹谱可以用于快速获取较宽频谱范围的分子振转谱,实现混合特征谱的快速检测或成像.窄带太赫兹源具有很好的光谱灵敏度和分辨率,适用于太赫兹抽运-探测、分子振转能级谱精细结构分辨以及太赫兹远程探测和成像.因此研制具有可调谐的高峰值功率的窄带太赫兹源是适用于探测和识别分子振转能级指纹谱的应用需求,而差频技术是获得高功率和宽调谐窄带太赫兹源最重要的技术之一.为了突出该技术的最新进展,本综述引证论文仅仅限于近5年来基于差频技术产生太赫兹波的研究进展,分为光学激光差频源和量子级联激光器差频源两大部分.对于光学激光差频源,分别对目前文献报道的各种双波长差频源和太赫兹产生用的非线性晶体进行分类介绍,并给出所采用的技术和实验结果;对于量子级联激光器差频源,分别介绍了量子级联激光器中的差频产生技术和波长调谐技术的最新进展.量子级联激光器差频太赫兹源是目前实现量子级联激光器在太赫兹波段室温运转的惟一技术,是实现小型化、窄带宽调谐和室温运转太赫兹源的新发展领域,值得关注.

关键词: 太赫兹源, 差频, 非线性晶体, 量子级联激光器

PACS: 07.57.Hm, 42.79.Nv, 42.70.Mp, 42.55.Px

DOI: 10.7498/aps.65.070702

## 1 引言

太赫兹(terahertz, THz)波通常是指频率在0.1—10 THz之间的电磁波,位于红外和毫米波段之间.相比于它的两个邻居波段所具有的光学和电子学研究手段,THz波段的开发和研究由于缺少有效的技术手段而发展相对滞后,从而形成了所谓“THz间隙”(terahertz gap).从20世纪80年代开始,由于飞秒激光技术的发展为THz源技术提供了有力工具,极大地促进了THz技术的光学方法研究,形成THz技术领域新的研究热潮. THz产生的光学方法是将高频电磁波向低频转换;而采用电子学方法,如返波振荡器、半导体激光器等技术是

将低频电磁波向高频转换.随着光学技术、电子技术、半导体技术的快速发展,就像在“THz间隙”两岸搭建的桥梁,正在迅速填补该间隙,在可以预见的将来,人类对全部电磁波谱的研究、开发和利用将不再存在这样的“空白”<sup>[1-5]</sup>.

THz技术应用主要分为THz频谱技术和THz成像,其中THz源是最主要的组成部分.从THz源的频谱特性可以分为窄带(单频)THz源和宽带THz源.从频谱技术方面来说,相干的宽带和窄带THz谱是一种互补性关系,具有各自的技术特点和应用范围.宽带THz谱可以用于快速获取较宽频谱范围的分子振转谱,实现混合特征谱的快速检测或成像<sup>[6]</sup>.窄带THz源具有很好的光谱灵敏度和分辨率,适用于THz抽运-探测、分子振转能级谱

\* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2011CB808101, 2014CB339800)、国家自然科学基金(批准号: 61377041, 61377047, 61322502)、教育部长江学者和创新团队发展计划(批准号: IRT13033)资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: lu\_chai@tju.edu.cn

精细结构分辨以及 THz 远程探测和成像 [7]. 因此研制具有可调谐的高峰值功率的窄带 THz 源是适用于探测和识别分子振转能级指纹谱的应用需求, 而差频技术是获得高功率和宽调谐窄带 THz 源最重要的技术之一. 在 THz 产生技术中, 差频方法是最早于 20 世纪 60 年代提出的技术, 最近 30 年得到了长足的发展, 成为目前 THz 产生的重要的技术之一 [7-11]. 差频方法产生的 THz 的主要优点在于: 实验装置简单、结构紧凑、没有阈值效应、高功率、宽调谐、窄线宽. 除此之外, 在所有光学方法中, 差频方法是惟一的可以在一定条件下所产生的 THz 功率可以随着抽运激光的功率和非线性晶体长度的增加而增加, 因此, 差频方法成为最有可能接近量子转换效率极限的方法 [11].

差频技术产生 THz 已经研究了几十年, 目前不仅在传统光学差频技术方面继续深入研究, 不断有新的成果出现; 而且最近将差频技术引入量子级联激光器 (quantum cascade laser, QCL) 中, 实现了室温下运转的量子级联差频 THz 源 [12-14]. 为了给读者展现该技术领域的最新研究进展, 本文将综述文献范围限制在最近 5 年的研究报道. 主要内容分为光学激光差频 THz 源和 QCL 差频 THz 源两大部分. 前者是传统光学方法, 分别从双波长抽运源和非线性差频晶体两个方面分别进行分类和总结; 而后者则是将电子学和光学产生 THz 技术的完美结合, 实现了室温运转的 QCL 差频 THz 激光源, 属于最新技术, 值得关注; 本文仅从 QCL 中的差频技术和调谐技术两个方面给予介绍.

## 2 光学差频 THz 技术研究的新进展

### 2.1 应用于差频产生的双波长抽运源

要通过差频技术得到连续可调谐的 THz, 首先要获得功率较高, 参与差频的双波长比较接近, 即两波的频率差要在 THz 波段, 并且在合适的波长范围内连续可调谐的双波长抽运源. 常用于差频的双波长抽运源可以有以下几种获得途径: 单激光器产生的双波长, 双激光器产生的双波长, 单光学参量振荡器 (optical parametric oscillator, OPO) 双波长, 单激光器与 OPO 差频以及双 OPO 差频. 这些技术在可调谐性、带宽、功率、体积、复杂性方面各有不同, 可以适用于不同的应用需求.

#### 2.1.1 单激光器双波长差频源

单激光器是指激光腔内仅有一种激光增益介质, 可以利用增益介质自身的复合能级结构和辅助技术 (比如 Fabry-Perot (F-P) 效应) 实现波长相近的多波长运转.

前者的典型例子有 CO<sub>2</sub> 激光器和掺 Nd 的固体激光器. 其中, CO<sub>2</sub> 激光器的输出波段在 10 μm 附近, 是很多常用的 THz 产生晶体的响应波段 [15], 同时气体增益介质具有很多振-转能级可以实现多波长运转. 最近主要相关报道见于我国华中科技大学和山东大学的工作 [16,17]. 该 CO<sub>2</sub> 双波长激光器是利用两个光栅作为外腔调谐镜, 选择不同的波长, 并利用不同的增益空间实现双波长振荡. 他们利用这种激光器分别在 GaAs 晶体和 GaAs 晶体中差频, 实现了 0.27—1.3 THz 和 0.11—4.15 THz 的调谐; 并相应地在 243.6 μm 和 236.3 μm 处实现了 11 nJ 和 2.1 μJ 的最高单脉冲能量.

掺 Nd 材料激光器具有多重能级结构, 在一定条件下可以直接实现相近的双波长稳定运转, 从而可以用于差频产生单频 THz 波. 在最近 5 年报道的有: 2011 年中国科学院理化技术研究所 Nd:YAG 激光器实现 1116 nm 和 1123 nm 双波长运转 [18] 和在 Nd:LCB 激光器实现 1050 nm 和 1069 nm 双波长及其自频率上转换波长的同时运转 [19]; 法国国家科学院报道的 Nd:GdVO<sub>4</sub> 激光器可以实现 1063 nm 和 1065 nm 双波长运转 [20]; 2011, 2012 年日本理化所报道在 Nd:YAG 主动调 Q 激光器中实现了 1319 nm 和 1338 nm 双波长同时运转 [21,22]; 2013 年我国天津大学报道了在 Nd:GYSGG 被动调 Q 激光器中实现了 1053 nm 和 1058.3 nm 的双波长运转 [23]; 清华大学报道了采用短腔连续 Nd:YVO<sub>4</sub> 激光器实现 1063.992 nm 和 1064.400 nm 的双纵模运转, 并在 DAST 晶体中实现差频产生 THz 波 [24]; 2014 年俄罗斯莫斯科大学采用主动调 Q 的 Nd:YLF 激光器实现了 1047 nm 和 1053 nm 的双波长运转 [25]. Nd 双波长源可调谐性较差, 一般用于产生固定波长的 THz 波 [23,24].

掺 Yb 材料与掺 Nd 材料相比, 具有较宽的荧光谱、相对较好的调谐特性. 但是 Yb 材料的电子能级简单, 不易直接实现多波长运转. 目前可以通过腔内插入 F-P 器件在掺 Yb 固体激光器中实现双波长运转 [26]; 而在掺 Yb 光纤激光器可以引入多周期光栅 [27] 或者在半导体光学放大器引入啁啾光栅都可

以实现双波长运转,并且可以通过温控调节光纤光栅的周期从而实现调谐特性<sup>[28]</sup>.

此外,单量子点半导体激光器通过外腔的两块体光栅也能够实现波长在 1180 nm 和 1260 nm 的差频 THz 源<sup>[29]</sup>. 单增益介质产生的双波长是自动同步的,该类差频源主要缺点在于增益竞争带来的工作稳定性问题.

### 2.1.2 双激光器双波长差频源

双激光器差频源是指两台相近波长的激光器直接差频或者在复合激光腔内有两块激光增益介质分别实现相近波长的振荡. 这种差频产生技术的双波长抽运源是研究人员最早普遍采用的. 最近 5 年的主要研究进展: 固体激光器方面,有美国里哈伊大学报道的单块 Nd:YLF 激光器复合腔实现差频产生 THz 波的基础上改进,采用了双 Nd:YLF 激光增益介质,实现各自的相近双波长运

转,并通过调  $Q$  实现脉冲同步,改变抽运电流可以调节波长,该双波长差频源(见图 1)保证了系统的小型化和提高了稳定性,并用于块状 GaP、周期晶轴反转 GaP 片堆和 GaSe 晶体中差频产生 THz 波<sup>[7,30,31]</sup>;同样的双波长激光器国内最近也有报道<sup>[32]</sup>. 同样的腔型也可以采用不同的增益介质,如斯洛文尼亚 Jozef Stefan 学院报道的完全相同的双波长激光器系统分别来自 Nd:YAG (1064 nm) 和 Yb: YAG 晶体(1030 nm),在有机非线性晶体中实现了 1—11 THz 的调谐带宽<sup>[33]</sup>. 日本东北大学采用商用双通道掺 Cr 镁橄榄石纳秒激光器,抽运源波长在 1216 nm,信号源波长可调 1217—1221 nm,在 GaP 波导中产生 THz 波<sup>[34]</sup>. 为了获得高功率的 THz 波,美国里哈伊大学采用 Nd:YAG 振荡器与其主振荡/功率振荡器(可调谐)的输出在 LiNbO<sub>3</sub> 中差频,实现最高 233 W 峰值功率的 THz 波<sup>[35]</sup>.

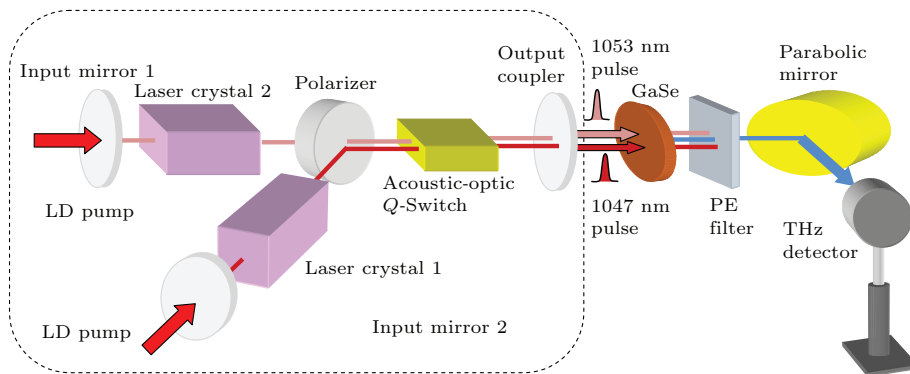


图 1 (网刊彩色) 双激光晶体产生双波长的差频源<sup>[7]</sup>

Fig. 1. (color online) Dual laser crystal to generate dual-wavelength in difference frequency sources<sup>[7]</sup>.

光纤激光器方面: 有美国 NP 光电子公司报道的基于波长分别为 1538 nm 和 1550 nm 的商用单频光纤激光器作为种子源,并在 Er/Yb 共掺的硅酸盐玻璃光纤的主振荡功率放大器中实现同步放大,用于在周期晶轴反转 GaP 片堆及其共振增强腔产生高功率 1.5 THz 波<sup>[36]</sup>. 英国南安普顿大学也报道了类似的双掺 Yb 硅基光纤种子源,波长分别在 1060 nm 和 1069 nm、构成双主振荡功率放大器差频产生 THz 装置<sup>[37]</sup>.

半导体激光器方面: 2013 年,美国亚利桑那大学采用两台垂直外腔表面发射激光器,波长分别为 1029.2 nm 和 1036 nm,用于在倾斜周期极化铌酸锂(PPLN)晶体及其共振增强腔产生了 110 mW 的 1.9 THz 窄带 THz 波<sup>[38]</sup>. 2014 年,日本静冈大学直

接采用商用分布反馈激光器(1071.7—1074.4 nm)和一个外腔激光二极管(1050—1074 nm)作为种子源,再经商用 Yb 光纤放大器放大后,在 GaP 中差频,实现了 0.15—6.2 THz 的宽调谐连续 THz 源<sup>[39]</sup>.

使用双激光器产生双波长作为非线性差频源操作简单,可以提供较高的输出功率,一般为单频和窄线宽.但是在可调谐方面,由于受到一般激光器的可调谐范围较小的限制,采用双频激光器差频的 THz 波的调谐范围相对较窄,而且也大大限制了一些具有在特殊波段满足差频相位匹配条件晶体的使用.

为了拓展 THz 波的可调谐范围和抽运波段,人们自然考虑将激光历史上最主要的频率变换技术:



光学参量过程, 包括光学参量产生 (optical parametric generation, OPG)、OPO 和光学参量放大 (optical parametric amplification, OPA) 作为差频双波长源. 参量过程是通过非线性晶体, 在光学二阶非线性过程中, 把抽运光能量转移到符合相位匹配条件的信号光及闲频光输出. 通过非线性频率变换过程, 其输出频率可以覆盖一些直接使用激光器所不能达到的波段.

### 2.1.3 激光器与 OPO 差频源

该技术就是将上节双波长激光器中的一束激光替换成 OPO. 由于 OPO 的信号光或闲频光的可调谐范围远比一般激光器宽, 从而实现扩展差频产生 THz 波的可调谐范围. 此外, OPO 具有多种调

谐方法, 比如: 通过改变晶体的方向、温度、极化周期、外电场等, 可以大大拓展 THz 源的工作波段.

这种技术中的一种方式是利用 OPO 腔中的剩余抽运激光与 PPLN 参量过程产生的信号光和闲频光直接差频产生 THz 波<sup>[40]</sup>; 另外一种方式是直接将上节双波长激光器之一换成 OPO, 再将激光与 OPO 在非线性晶体中差频, 从而实现 THz 波的较宽调谐. 比如, 中国科学院上海技术物理所报道采用这种技术在 GaP<sup>[41]</sup> 和 GaSeS 晶体<sup>[42]</sup> 中实现差频 THz 产生, 可调谐范围分别为 0.39—3.13 THz 和 0.57—3.57 THz; 天津大学报道采用该技术在块状 LiNbO<sub>3</sub> 晶体中实现了 0.1—3.2 THz 的可调谐 THz 波<sup>[43]</sup>, 实验装置见图 2.

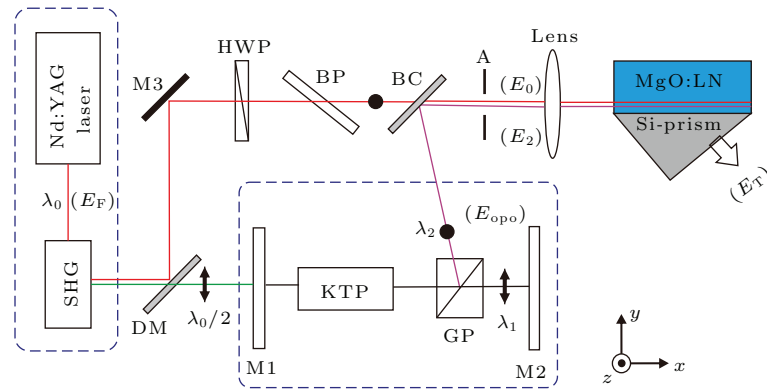


图 2 (网刊彩色) 单激光器与 OPO 差频源<sup>[43]</sup>

Fig. 2. (color online) Difference frequency source based on single laser and OPO<sup>[43]</sup>.

单激光器与 OPO 差频源相当于用窄带 (单色) 激光扫描宽带 OPO 实现窄带宽调谐 THz 波. 单激光器可为系统提供较高的能量, 而单 OPO 的可调谐性为 THz 差频输出的宽带可调谐性提供了基础条件. 因此, 该技术手段既满足了一定的功率需求, 又具备了一定的可调谐性. 如果继续拓展调谐范围, 采用相对宽带可调谐的 OPO 的差频源是一个必然选择.

### 2.1.4 单 OPO 差频源

单 OPO 差频源是利用近简并点的信号光和闲频光之间的差频实现 THz 波. 2011 年美国斯坦福大学报道采用单环腔 PPLN 皮秒 OPO 在近简并点的信号光与闲频光入射周期晶轴反转 GaAs 片堆中实现了差频 THz 产生, 并通过 F-P 标准具实现 THz 波的调谐<sup>[44]</sup>. 2012 年, 美国里哈伊大学报道了一种采用一块周期晶轴反转 KTP 片堆的 OPO, 可同

时实现产生波长相近的双信号光和闲频光; 再将双闲频光入射在周期晶轴反转的 GaP 片堆中, 产生了 2.54 THz, 可调谐范围为 2.19—2.77 THz<sup>[45]</sup>. 2013

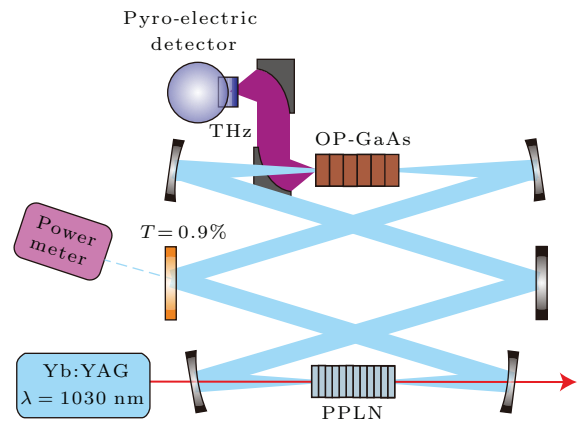


图 3 (网刊彩色) 单 OPO 差频源<sup>[46]</sup>

Fig. 3. (color online) Difference frequency source based on single OPO<sup>[46]</sup>.

年德国弗朗霍夫物理测量技术研究所采用与文献[45]完全相同的腔型和技术实现了1—4.5 THz连续可调谐差频THz源<sup>[46]</sup>,该装置见图3.

然而,单OPO差频产生THz波的调谐范围仍然受到抽运激光的可调谐性和简并点附近平坦度的限制.为了增加差频光源的可调谐范围,双OPO差频技术应运而生,成为目前宽调谐THz波产生的主要技术手段.

### 2.1.5 双参量过程的差频源

所谓双OPO差频源,主要是指参与差频产生THz波的两束入射光为参量过程产生的信号光或闲频光,目前最普遍的技术手段为腔内采用双

非线性频率变换晶体.日本千叶大学2011年<sup>[47]</sup>和2013年<sup>[48]</sup>报道采用两块周期极化近化学比钽酸锂(PPSLT)晶体的直腔型OPG,在其中一个晶体上加温控调节,在380—440 K温度范围,可实现1571—1626 nm调谐的信号光,在DAST晶体中产生的THz波可调谐范围可达0.5—7 THz.同一时期,日本理化所和日本名古屋大学也分别报道了采用双BiBO与双BBO晶体<sup>[49,50]</sup>和双KTP晶体<sup>[51]</sup>的直腔型OPO双波长源,分别在DAST(或BNA),和OH1有机晶体中实现了差频THz波的1—30 THz和0.5—10 THz的超宽带可调谐,并应用于THz成像<sup>[52]</sup>;该典型实验装置如图4所示<sup>[50]</sup>.

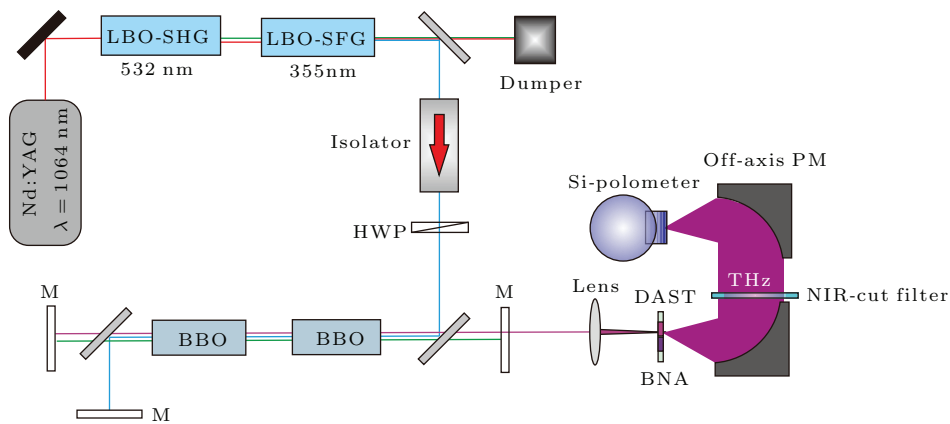


图4 (网刊彩色) 双波长OPO差频源<sup>[50]</sup>

Fig. 4. (color online) Difference frequency source based on double-wavelength OPO<sup>[50]</sup>.

另外,美国里哈伊大学在前面单块周期晶轴反转KTP晶体的OPO产生两对信号光和闲频光工作<sup>[45]</sup>的基础上,再加入块状KTP晶体,实现了单腔OPO产生三对信号光和闲频光输出,并将三波长闲频光在GaAs晶体中差频,实现了在1.25 THz和2.5 THz的双波长THz波输出,并通过温度实现可调谐<sup>[53,54]</sup>.2014年天津大学采用双KTP-OPO在DSTMS晶体差频,实现了0.88—19.27 THz的宽带THz波输出<sup>[55]</sup>.2015年,荷兰内梅亨大学报道采用双束腰的环形腔结构和双抽运PPLN晶体实现了独立可调谐的双OPO;通过变换晶体的周期,调谐范围可达2.9—4.2 μm,对应于30 THz的调谐范围<sup>[56]</sup>.上述的双束腰环型腔结构,严格讲还是一个共振腔,我们研究室设计和研制了独立可调谐的双线型腔OPO系统,见图5.该系统分别通过对两个PPLN的周期和温度调谐以及各自的腔长

调谐,真正实现了双共振腔的独立调谐,能够在更宽范围内实现差频产生THz波的可调谐.

2015年,美国戴顿大学的研究人员采用同步抽运的双路PPLN-OPG,其中一路使用固定周期的PPLN,另一路使用扇形周期的PPLN,实现波长的选择和调谐;将两路OPG的闲频光再入射到DAST中差频,获得了3.1 GHz线宽,可调节范围从1.5—2.7 THz的THz波输出<sup>[57]</sup>,该实验装置如图6所示.此外,德国康斯坦茨大学在2013年还报道了采用飞秒双OPA在GaSe中差频实现宽带强场THz脉冲,并用于抽运-探测实验<sup>[58]</sup>.

通过参量过程的双波长差频源,优点在于具有波长调节方便和灵活,调谐范围较宽.不足是参量过程的转换效率一般较低,导致差频产生THz波的输出功率相对较低.

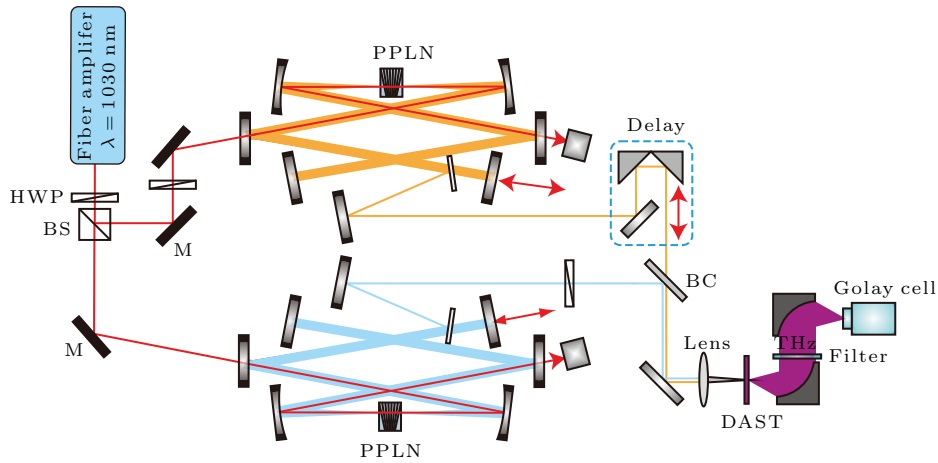


图5 (网刊彩色) 独立宽调谐的双 OPO 差频 THz 实验系统

Fig. 5. (color online) Terahertz difference frequency experimental system with the separately widely tunable double near-IR OPOs.

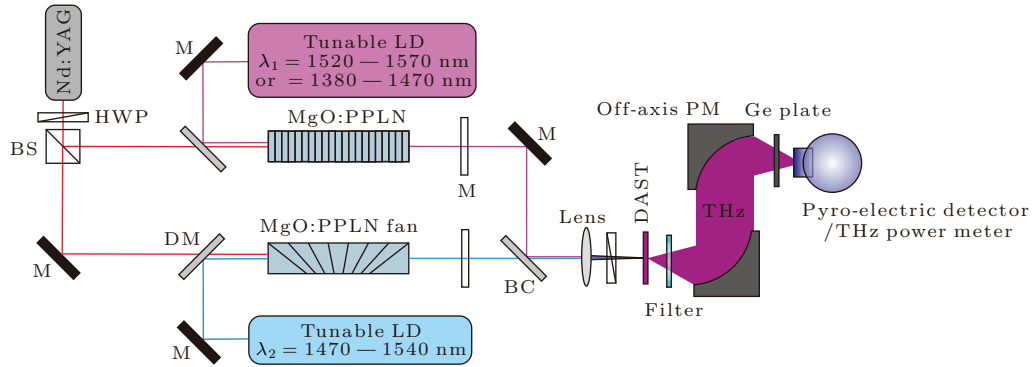


图6 (网刊彩色) 基于 PPLN-OPG 系统的双波长光源差频 THz 实验装置 [57]

Fig. 6. (color online) Terahertz difference frequency experiment device using double wavelengths from fan PPLN-OPG [57].

## 2.2 用于差频产生 THz 波的非线性晶体

在差频产生 THz 波的过程中, 非线性差频晶体是关键器件. 用于差频产生 THz 波的非线性晶体应该具有如下特性: 1) 较高的二阶非线性系数; 2) 较低的 THz 波段吸收系数; 3) 较高的损伤阈值; 4) 晶体的相位匹配波段符合可利用的激光波长. 目前, 在差频 THz 实验中采用的非线性晶体主要分为两种: 无机晶体材料和有机晶体材料. 最近 5 年的相关研究报道和进展如下.

### 2.2.1 无机晶体材料

#### 1) 常规块状非线性晶体的应用

这几年报道的差频产生 THz 波采用的常规块状非线性晶体有: GaAs [16,17], GaP [24,26,36,39], GaSe [30,31,53,58] 和 MgO:LiNbO<sub>3</sub> [43,59], 实验结果总结在表 1 中.

为了改善在非线性晶体中频率转换的效率, 人们在对晶体的改造方面也做了一些尝试.

#### 2) 改进的非线性晶体

掺杂改性: 这方面最主要的工作是对 LiNbO<sub>3</sub> 改性的近化学计量比和掺杂氧化镁 (MgO). 这是由于 LiNbO<sub>3</sub> 晶体存在光折变效应和低损伤阈值等不足, 但可以通过近化学计量比和掺杂 MgO 方法改善其物理和光学特性; 目前在差频和波面倾斜法产生 THz 波的实验中广泛应用的是 5% MgO:LiNbO<sub>3</sub> [43,59]. 此外, 通过改变晶体生长方法 [60] 或者适当掺硫 [42] 都可以明显改善 GaSe 的光学性质以及导热性、硬度和损伤阈值. 中国科学院上海技术物理所报道的采用 S-doped (2 wt.%) GaSe 差频, 获得了峰值功率 21.8 W 的 1.62 THz 波, 其转换效率高达 45%, 明显高于非掺杂的 GaSe 晶体 [42].

表1 近5年使用常规块状非线性无机晶体的实验结果  
Table 1. Experimental results using the block nonlinear inorganic crystal.

差频晶体	差频源	入射波长/ $\mu\text{m}$	产生 THz 主波长/THz	调谐范围/THz	平均功率/峰值功率/能量 ( $\mu\text{W}/\text{W}/\mu\text{J}$ 或峰值电场 (MV/cm))	转换效率	文献
GaAs	纳秒 CO <sub>2</sub>	10.23/10.67	1.269	0.11—4.15	10/35/2.1	$1.8 \times 10^{-5}$	[17]
		10.247/10.697	1.23	0.27—1.3	—/0.182/0.011	$1 \times 10^{-5}$	[16]
GaP	脉冲 Nd:YAG	1.0356/1.0417	1.65	—	0.127 nW/—/—	—	[26]
	纳秒双 MOPA	1.060/1.069	2.4	0.7—2.5	2.4/2.4 mW/—	—	[36]
	连续双 YbFA	1.0717—1.0744	1.9469	0.15—6.2	—	—	[39]
GaSe	脉冲 Nd:YLF	1.047/1.053	1.32	—	1.74 nW/—/—	—	[29]
	脉冲 Nd:YLF	1.047/1.053	1.643	—	4.464/—/—	—	[31]
	脉冲 Nd:YAG	1.053/1.064	2.983	—	2.09/—/—	—	[31]
	飞秒双 OPA	1.26	20	—	25 MV/cm	—	[58]
MgO: LiNbO <sub>3</sub>	激光-OPO	1.06/1.06—1.09	—	0.1—3.2	—/—/1.58 nJ	—	[43]
	双 KTP-OPO	1.3—1.6	—	0.2—7.2	—	—	[59]

波导改型: 除了对晶体本身改性之外, 借助于波导对传输波的约束作用来改善 THz 波束质量、增加非线性作用长度和减少传输损耗也是目前采用差频方法获得高效 THz 波输出的一种可行方法. 其中, 中国台湾清华大学 2011 年报道将 PPLN 的通光面减小到形成对 THz 波段的波导约束, 而对抽运波段非波导限制, 称之为“非线性光学半波导”<sup>[61]</sup>. 他们通过比较长度同为 25 mm, 通光面为 0.5 mm 厚  $\times$  0.6 mm 宽的二维波导型 PPLN 与一维波导 (0.5 mm 厚和宽度无限制的片状) 型 PPLN 中产生的 THz 波功率, 得出增加一维对 THz 波的波导约束明显地提高了差频产生 THz 波的输出效率. 而借助于“光子晶体”结构的波导和对于半导体材料更适用的“桥型波导”设计, 通过模拟<sup>[62,63]</sup>和实验证明<sup>[34,64]</sup>也是有效提高差频产生 THz 波效率的技术手段. 其中, 日本东北大学在 2012 年报道, 利用自制的光子晶体和桥型结构的 GaP 波导中实现了非共线差频产生 THz 波, 并进行了比较<sup>[34]</sup>. 在 2014 年, 他们又报道了在 GaP 桥型结构波导中的偏振模的选择实验<sup>[64]</sup>. 2015 年, 他们又提出将 GaP 桥型波导嵌入高阻硅基槽型波导中, 形成对 THz 波的全内反射型约束功能, 可以将差频产生 THz 波的光子效率提高两个数量级<sup>[65]</sup>.

准相位匹配: 为增加非线性晶体的相干长度, 提高转换效率, 主要技术就是“准相位匹配”, 其目

的是尽量在相干长度的周期实现晶体的非线性系数变化. 在差频产生 THz 波技术中, 对于铁电材料主要采用“周期极化”技术, 比如: 2011 年德国弗莱堡大学报道采用一块 PPLN 实现 OPO 和差频产生连续可调谐 THz 波<sup>[40]</sup>; 2012 年美国里哈伊大学报道的 PPLN 中差频, 获得最高 233 W 峰值功率的 THz 波<sup>[35]</sup>. 而对于半导体材料主要采取“晶轴反转片堆”方法. 半导体材料的“晶轴反转片堆”法原理是将晶体沿通光方向按照其相干长度 (厚度) 堆积, 再将每个相干长度的晶轴反转排列, 并采用“无胶扩散黏接法”构成“准相位匹配”的半导体片堆, 其代表为 GaP. 2011 年美国 NP 光电子公司报道在共振环形腔中采用 4 层 GaP 片堆差频产生了平均功率 339  $\mu\text{W}$ , THz 转换效率  $2.43 \times 10^{-4}$ <sup>[36]</sup>; 同年, 美国里哈伊大学同样采用 4 层 GaP 片堆差频产生 THz 波的峰值功率高达 4 kW, 光子转换效率 40%<sup>[66]</sup>. 对于另一种常用的半导体材料 GaAs, 其构成“周期反转片堆”的一种方法是直接堆积晶片. 2011 年, 美国斯坦福大学采用 11 层和 15 层 GaAs 晶片构成“周期反转片堆”, 在环形共振腔中实现平均功率 200  $\mu\text{W}$  的 THz 波输出<sup>[44]</sup>; 另外一种方法是采用分子束外延和氢化物气相外延结合生长取向反转的 GaAs/Ge/GaAs 层系, 可以实现不同周期的准相位匹配 GaAs. 2013 年, 德国弗朗霍夫物理测量技术研究所采用这种准相位匹配 GaAs 和共



振环形腔中实现了大于 10  $\mu\text{W}$  的连续可调谐、单频 THz 波 [46]. 以上实验结果总结在表 2.

无机晶体的优点是具有较高的损伤阈值, 但其

在高频段的 THz 波光子吸收非常严重, 因此很难在 10 THz 以上产生有效 THz 波. 而这个不足可以由有机非线性晶体填补.

表 2 近 5 年使用准相位匹配非线性无机晶体的实验结果

Table 2. Experimental results using the quasi-phase-matched nonlinear inorganic crystals.

准相位匹配 差频晶体	差频源	入射波长/ $\mu\text{m}$	产生 THz 主波长/THz	调谐范围/THz	平均功率/峰值功率/ 能量 ( $\mu\text{W}/\text{W}/\mu\text{J}$ )	转换效率	文献
GaAs	皮秒单 OPO	简并点 2.1	$\sim 1.7$	0.5—4	200/—/—	—	[44]
	连续单 OPO	简并点 2.06	1.2	1—4.5	$> 10$ /—/—	—	[46]
GaP	纳秒双 MOPA	1.55/1.538	1.5	—	339/212 mW/—	$2.43 \times 10^{-4}$	[36]
	脉冲 Nd:YAG-OPO	1.064/1.079—1.066	$\sim 2.5$	1—3.85	—/2.73 kW/—	$18.2 \times 10^{-4}$	[66]
MgO:LiNbO <sub>3</sub>	连续激光-OPO	1.03/1.06—1.09	1.3	1.18—2.91	3.9/—/—	—	[40]
	纳秒 Nd:YAG-MOPO	1.064/—	14.4	—	—/233/—	—	[35]

### 2.2.2 有机晶体材料

有机晶体的主要优势在于具有较大的二阶非线性系数和对 THz 波的宽带透过特性, 是实现宽带可调谐 THz 波的主要材料. 在 THz 领域应用的标志性有机晶体有苯乙烯基吡啶晶体——DAST (N, N-dimethylamino-N'-methylstilbazolium 4-methylbenzenesulfonate), 酚烯晶体——OH1(2-{3-[4-hydroxystyryl]-5, 5-dimethylcyclohex-2-enylidene}malononitrile) 和喹啉晶体——HMQ(2-(4-hydroxy-3-methoxystyryl)-1-methylquinolinium); 并通过有机大分子中的阴、阳离子替换方法开发出很多的上述标志类晶体的新型衍生物晶体. 最近 5 年主要报道的差频产生 THz 波用的有机晶体如下.

2011 年, 日本千叶大学采用双 OPG 在 DAST 晶体中差频产生 3.2 THz 的输出 [47]; 2013 年, 他们又在 DAST 中实现了 0.5—7 THz 的宽调谐 [48]; 2011 年, 日本理化所报道采用双波长光纤激光器在 DAST 中实现 0.5—2 THz 的可调谐输出 [27]; 2012 年他们采用双 OPO 分别在 DAST 和 BNA 中差频, 获得了 1—30 THz 的宽带调谐谱, 并通过两个晶体 THz 谱的叠加可以相互填补声子吸收带 [50,67]. 2013 年, 日本名古屋大学采用双 KTP-OPO 在 OH1 中差频, 获得 0.5—10 THz 的调谐范围, 并与 DAST 晶体比较, 得出在 1—2 THz 的低频带, OH1 比 DAST 具有更高的转换效率 [51]. 2014 年, 天津大学采用双 KTP-OPO 在国产 DSTMS 晶

体差频, 实现了 0.88—19.27 THz 的宽带 THz 波输出 [55]. 需要强调的是, 中国科学院理化技术研究所、中国科学院福建物质结构研究所、北京科技大学等单位也能够生长该类有机晶体及其新的衍生物 [68—72], 打破了国外的垄断. 此外, 韩国亚洲大学在新型喹啉有机晶体 HMQ 的衍生物研究上取得了显著进展, 开发出新型衍生物晶体: HMQ-T, HMQ-MBS, HMQ-TMS [73—75]. 其中 HMQ-TMS 和 HMQ-T 晶体与 DAST, OH1 和 ZnTe 晶体的特性比较见表 3 [75].

尽管对于 HMQ-TMS 晶体还没有差频应用的报道, 但是该晶体已经由光学整流法产生 THz 波检验: 美国麻省理工学院于 2015 年报告采用 800 nm 激光直接抽运该晶体实现了多周期 THz 脉冲, 中心波长 THz 范围在 0.3—0.8 THz, THz 脉冲能量是同样条件下用 ZnTe 的 20 倍 [76]; 瑞士伯尔尼大学在 2014 年采用 1000 nm 激光抽运 0.2 mm 厚的 HMQ-TMS 晶体, 产生 THz 波范围在 0.8—1.5 THz, 能量转换效率是采用 0.3 mm 厚 GaP 的 41 倍 [77]; 2015 年, 瑞士保罗·谢勒研究所采用具有 0.8—1.5  $\mu\text{m}$  波长可调谐, 脉冲宽度 65 fs, 脉冲能量数 mJ 的钛宝石激光器驱动的高能 OPA 抽运该晶体, 通过调谐抽运波长和优化相位匹配, 获得了满足变换极限的准单周期的高能 THz 脉冲, THz 谱宽度变化达可 7 个倍频程 (0.1—15 THz) [78]. 这些实验证明 HMQ-TMS 晶体具有比 DAST 更宽可调谐和高功率差频应用的优势.

表3 HMQ-TMS 晶体与 HMQ-T, OH1, DAST, ZnTe 晶体的参数比较 [75]  
Table 3. Physical data of HMQ-TMS in comparison with benchmark HMQ-T, OH1, DAST and ZnTe crystals [75].

	晶体名称				
	HMQ-TMS	HMQ-T	OH1	DAST	ZnTe
甲醇中的最大吸收波长/nm	439	439	424	475	—
微观一阶超极化率/ $10^{-30}$ esu	185	169	93	194	—
微观光学非线性/ $10^{-30}$ esu	185	155	63	161	—
电光系数	—	—	$r_{33} = 75$ pm/V at 785 nm	$r_{11} = 77$ pm/V at 800 nm	$r_{41} = 4$ pm/V at 680 nm
40 °C 时溶解度 (g/100 g 甲醇)	2.24	0.78	3.74	3.73	—
大尺寸生长	容易	非常困难	容易	容易	—
厚度控制	容易	非常困难	非常困难	非常困难	—
水解	无	无	无	有	—
截止波长/nm	< 595	< 595	< 640	< 680	—
峰值 THz 电场/ $\text{kV}\cdot\text{cm}^{-1}$ ( $P_{\text{pump}} = 158$ mW, 晶体厚度 3 mm)	57	—	31	—	21
高频范围 (幅值 > 1.0)/THz (对于 HMQ-T 晶体, $P_{\text{pump}} = 38$ mW, 晶体厚度 1 mm, 其余晶体条件同上)	6.0	3.4	5.3	—	3.8
在 1.1 THz 附近的吸收	弱	强	弱	强	弱

无机晶体具有较高的破坏阈值, 但 THz 窗口较窄, 一般小于 3 THz, 适用于高功率窄带差频 THz 源; 而有机晶体具有较高的二阶非线性和电光系数, 以及覆盖全 THz 域的窗口宽度, 适用于高效宽带可调谐差频源.

### 3 QCL 差频 THz 技术的研究新进展

最近 5 年, 除了上述传统光学差频 THz 波技术的研究之外, 将差频技术与 QCL 相结合实现了室温下运转的小型化单频和宽调谐的 THz QCL 是最新的突破性进展 [14]. 标准注入型 QCL 在中红外波段可以室温运转, 而在 THz 波段由于受到半导体量子阱材料、掺杂特性和制作工艺所限, 目前只能处于低温运转状态, 而且效率比较低, 这方面的综述见文献 [13, 79] (图 7 [13]). 因此, 实现室温运转的量子级联 THz 激光源一直是该领域的研究方向. 而利用差频技术与 QCL 相结合实现室温运转的 THz 激光源就是突破该瓶颈的新技术, 目前该方面的世界领先工作主要是由美国西北大学和德克萨斯大学完成的 [12, 14]. 下面是最近 5 年的主要研究进展.

#### 3.1 QCL 的内腔差频 THz 技术

QCL 的差频 THz 技术是利用量子级联技术在中红外产生双波长激光, 并直接利用激活区半导体材料中大二阶非线性极化率产生差频辐射. 为了具有较宽的增益线宽, 一般采用激光上能态为束缚态, 激光下能态为连续态的量子级联设计, 激活区也是高非线性区. 2011 年美国德克萨斯大学提出一种改进设计, 在激光器的输出端引入被动的共振二阶非线性极化率区, 希望减小激活区共振非线性对中红外激光的影响; 其原理性实验产生了峰值功率 100 nW 的 4.1 THz 输出, 在 210 K 温度下的转换效率为  $0.5 \mu\text{W}/\text{W}^2$  [80]. 同年, 美国西北大学提出通过在 QCL 波导中集成双波长分布反馈光栅以纯化中红外激光器的单色性, 从而提高 QCL 差频 THz 源的单色性, 在室温下实现了最大峰值功率  $8.5 \mu\text{W}$  和线宽为 6.6 GHz 的 4 THz 输出, 最高转换效率为  $10 \mu\text{W}/\text{W}^2$  [81]. 2012 年, 美国德克萨斯大学提出在量子级联差频 THz 源中采用切伦科夫相位匹配方式 (见图 8) 取代普通波导共线模式匹配方式, 减小了对 THz 波的声音吸收损耗和提高了

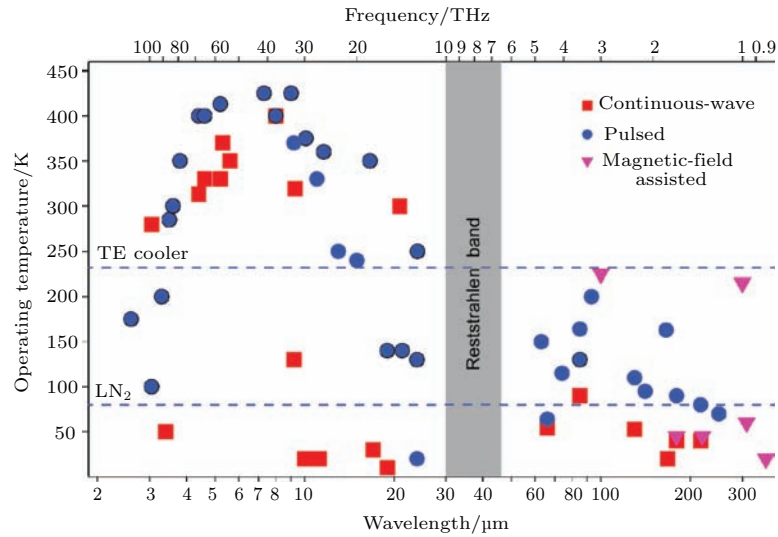


图7 (网刊彩色) QCL 在中红外与 THz 波段的运转温度 [13]

Fig. 7. (color online) Operating temperature as a function of the emission wavelength (or frequency) for QCL [13].

THz波的耦合输出效率, 实现转换效率为  $45 \mu\text{W}/\text{W}^2$ , 大约提升了百倍 [82]. 同年, 美国西北大学又提出在较长中红外波段 (9—11  $\mu\text{m}$ ) 采用单声子共振 (single phonon resonance, SPR) 设计以提高中红外激光效率和较大二阶非线性极化率, 同样采用切伦科夫相位匹配方式, 在 2.6 THz 和 3.1 THz 处分别获得了最大峰值功率  $32 \mu\text{W}$  的输出和最高  $50 \mu\text{W}/\text{W}^2$  的转换效率; 并通过设计和刻蚀一排 10 组不同的双周期分布反馈光栅实现了从 1.0—4.6 THz 的单频 THz 波的宽调谐 [83]. 2013 年, 他们报道在中红外差频双波长的波导激活区都采用 SPR 设计, 普通波导共线模式相位匹配方式和 10 组不同的双周期分布反馈光栅, 实现了窄带 THz 波从 3.3—4.6 THz 的可调谐, 在 4 THz 处获得峰值功率  $65 \mu\text{W}$  和  $23 \mu\text{W}/\text{W}^2$  的转换效率 [84]. 同年, 美国德克萨斯大学在上述切伦科夫相位匹配方式工作 [82] 的基础上, 进行三点改进: 1) 采用具有较高电子迁移率的 InGaAs 材料取代 InP 材料作为电流汲取层, 使得该层厚度仅有 200 nm, n-掺杂达  $7 \times 10^{17} \text{cm}^{-3}$  (而同掺杂量级的原 InP 电流汲取层的厚度为 3  $\mu\text{m}$ ), 并在激活区和电流汲取层之间增加了 n-掺杂为  $1.5 \times 10^{16} \text{cm}^{-3}$  和厚度为 3  $\mu\text{m}$  的 InP 隔离层, 明显减小了对 3—4 THz 波段的损耗率; 2) 在中红外双波长激活区都集成为高非线性二阶极化率, 使得差频产生 THz 波的作用

长度加倍; 3) 调整波导包层的厚度和掺杂浓度, 使得上下反射的 THz 波满足干涉相长和减小 THz 波损耗, 最终在 4 THz 处获得 0.12 mW 的峰值功率, 转换效率达到  $0.6 \text{mW}/\text{W}^2$  [85]. 2014 年, 美国西北大学采用埋脊波导和混合分布反馈光栅, 以及切伦科夫相位匹配方式, 获得 3  $\mu\text{W}$ , 3.6 THz 的连续 THz 输出; 并通过增加激活区面积和掺杂浓度, 在脉冲模式下获得 1.4 mW 的峰值功率, 转换效率为  $0.8 \text{mW}/\text{W}^2$  [86]. 同年他们又报道了一种集成了一个被动分布布拉格反馈光栅区和两个取样分布光栅区的脊型波导量子级联差频单色宽调谐 THz 激光器, 并在 4 THz 处获得 113  $\mu\text{W}$  的峰值功率, 转换效率为  $110 \mu\text{W}/\text{W}^2$  [87]. 前面的量子级联差频 THz 激光器一般采用束缚态到连续态跃迁型设计, 激活区需要异质结构. 2015 年, 日本滨松公司和美国德克萨斯大学合作, 提出非相交的双上能态设计, 这种设计的激活区为同质结构, 具有更大的二阶非线性极化率, 在转折点附近的转换效率可提高 4 倍, 并将室温运转的 THz 频率降低到 2.9 THz, 转换效率高达  $0.8 \text{mW}/\text{W}^2$  [88].

基于中红外量子级联内腔差频室温 THz 激光器具有小型化、集成化、窄带宽、易调谐等优良特性, 在 THz 通信、传感、光谱技术和频率梳等方面具有应用前景. 目前采用金属有机气相外延法可以批量生产 [89].

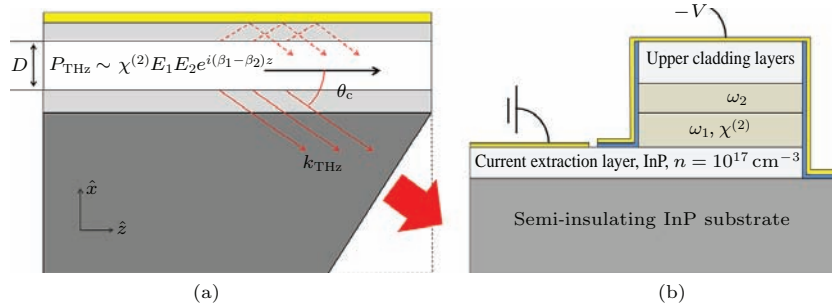


图8 (网刊彩色) 基于切伦科夫差频 THz QCL 的 (a) 示意图和 (b) 结构图 [82]

Fig. 8. (color online) (a) Schematic and (b) facet view schematic of Čerenkov THz DFG emission in a QCL [82].

### 3.2 量子级联差频 THz 源的调谐技术

光学差频产生 THz 波的可调谐范围与抽运激光波长的可调谐、非线性晶体的透过窗口带宽和相位匹配条件相关。而在量子级联差频 THz 激光器的调谐特性只能限于对中红外 QCL 的波长进行调谐。调谐技术主要有内腔温度调谐和电调谐以及外腔光栅调谐，还有利用加工技术形成多波长列阵型差频 THz 激光器 [84,85]。

从 3.1 节的报道中，对中红外 QCL 波长最方便的调节是温控分布反馈光栅，通过热效应改变材料的有效折射率来改变分布反馈光栅的衍射波长，从而改变激光器的波长，但温控调节 THz 波长的范围很窄 [81]。采用多波长列阵型差频 THz 源是将多个不同双波长 QCL 集成到一个芯片上，通过开关选择输出的 THz 波长 [84,85]，但工艺要求和复杂性随着集成激光器数量增加而增大。2013 年，美国西北大学在取样光栅分布反馈结构的基础上 [87]，提出采用数字级联光栅型的取样光栅构建分布反馈 QCL，可以通过电调谐改变布拉格光栅的周期，从而实现连续波长可调谐 [90]。2014 年，美国德克萨斯大学在双布拉格反射区镀上金属电极，通过施加直流偏压或脉冲电流实现 QCL 的波长可调谐，差频产生 1—5 THz 的 THz 输出 [91]。电调谐方式可以实现 QCL 波长的连续可调谐，其实质与温控相同，仍然是通过改变材料的折射率实现布拉格光栅的共振波长移动。

2013 年，美国德克萨斯大学提出的外腔光栅法调谐中红外激光差频 [86] 实现了 1.2—5.9 THz 的宽调谐量子级联差频 THz 源 [92]；该技术调谐方便，调谐范围较宽，其结构见图 9 [85]。外腔光栅法属于机械调谐和需要附加光学器件，体积和调谐速度

受限。

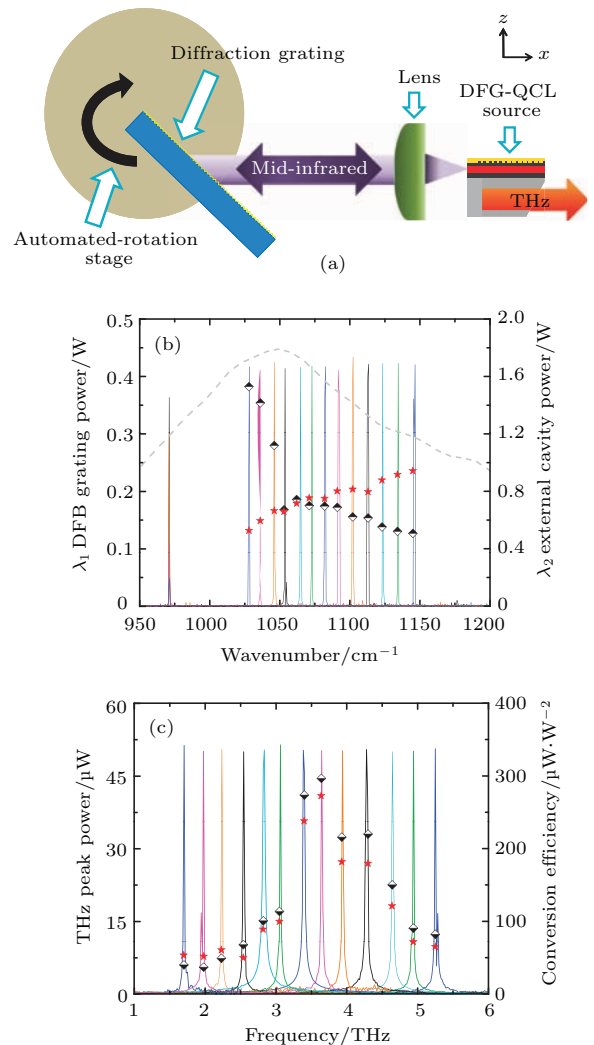


图9 (网刊彩色) 外腔光栅调谐法的分布反馈 QCL 差频 THz 源 (a) 结构图; (b) 对中红外 QCL 的调谐; (c) 差频 THz 源输出范围 [85]

Fig. 9. (color online) Broadband tuning with an external cavity setup in a QCL [85]: (a) Schematic diagram; (b) mid-infrared spectra; (c) corresponding THz spectrum.



## 4 总结与展望

光学差频是产生高功率、窄线宽和宽调谐 THz 波最有效的技术之一. 本文以该技术在最近 5 年的研究报道为主线, 分别总结了该技术在光学差频源和非线性变换晶体方面的分类与研究进展. 差频源包括单激光器双波长源、双激光器双波长源、单激光器-OPO 源、双 OPO 源; 非线性变换晶体包括无机晶体、有机晶体和准相位匹配型晶体等. 将光学差频技术与 QCL 相结合是使 QCL 在 THz 波段实现室温运转的关键技术, 是当前该领域中的研究热点之一, 属于光学差频产生 THz 技术发展的新方向. 因此, 本文对基于光学差频技术的室温运转的量子级联 THz 激光器的最新技术也给予重点介绍, 包括: 中红外 QCL 双波长产生技术; 在半导体材料中直接差频产生 THz 波的切伦科夫相位匹配耦合输出技术; 对中红外 QCL 双波长(差频产生 THz 波)的调谐技术.

随着 THz 技术的发展和应用领域的拓展, 高功率、可调谐、宽频段、结构紧凑、操作方便成为 THz 源的发展趋势. 基于差频技术产生高功率、窄线宽、宽调谐 THz 源就具有上述优势. 相信随着差频源技术的不断发展和非线性晶体的创新研发, 差频 THz 源的性能将有更大的发展空间, 并将在 THz 光谱、THz 成像、THz 检测、THz 医学、THz 通信等领域中获得更广泛的应用.

## 参考文献

- [1] Zhang X C, Xu J Z 2010 *Introduction to THz Wave* (New York: Springer Science+Business Media, LLC) pp6-20
- [2] Jepsen P U, Cooke D G, Koch M 2011 *Laser Photon. Rev.* **5** 124
- [3] Shumyatsky P, Alfano R R 2011 *J. Biomed. Opt.* **16** 033001
- [4] Leyman R, Bazieva N, Kruezek T, Sokolovskii G S, Rafailov E U 2012 *Rec. Patents Signal Proc.* **2** 12
- [5] Hwang H Y, Fleischer S, Brandt N C, Perkins Jr B G, Liu M, Fan K, Sternbach A, Zhang X, Averitt R D, Nelson K A 2015 *J. Mod. Opt.* **62** 1447
- [6] Zuo J, Zhang L L, Gong C, Zhang C L 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 010704 (in Chinese) [左剑, 张亮亮, 巩辰, 张存林 2016 物理学报 **65** 010704]
- [7] Ding Y J 2014 *J. Opt. Soc. Am. B* **31** 2696
- [8] Yang P F, Yao J Q, Bing B B, Di Z G 2011 *Laser Infrared* **41** 125 (in Chinese) [杨鹏飞, 姚键铨, 邴丕彬, 邸志刚 2011 激光与红外 **41** 125]
- [9] Ding Y J, Zhao P, Li D 2011 *J. Phys.* **414** 012003
- [10] Ding Y J, Zhao P, Ragam S, Li D, Zotova I B 2011 *Chin. Opt. Lett.* **9** 110004
- [11] Zhang Y P, Wu Z X, Shen D L, Liu M, Yin Y H, Zhang H Y, Zhong K, Yao J Q 2014 *Laser Optoelectron. Prog.* **51** 152 (in Chinese) [张玉萍, 吴志心, 申端龙, 刘蒙, 尹贻恒, 张会云, 钟凯, 姚建铨 2014 激光与光电子学进展 **51** 152]
- [12] Razeghi M, Lu Q Y, Bandyopadhyay N, Zhou W, Heydari D, Bai Y, Slivken S 2015 *Opt. Express* **23** 8462
- [13] Vitiello M S, Scalari G, Williams B, de Natale P 2015 *Opt. Express* **23** 5167
- [14] Jung S Y, Jiang Y F, Vijayraghavan K, Jiang A T, Demmerle F, Boehm G, Wang X J, Troccoli M, Amann M C, Belkin M A 2015 *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.* **21** 1200710
- [15] Lu Y Z, Wang X B, Miao L, Zuo D L, Cheng Z H 2011 *Chin. Phys. Lett.* **28** 034201
- [16] Rao Z, Wang X, Lu Y 2011 *Opt. Commun.* **284** 5472
- [17] Lu Y, Wang X, Miao L, Zuo D, Cheng Z 2011 *Appl. Phys. B* **103** 387
- [18] Li C Y, Bo Y, Xu J L, Tian C Y, Peng Q J, Cui D F, Xu Z Y 2011 *Opt. Commun.* **284** 4574
- [19] Zhang J X, Han L, Wu Y, Zong N, Fu P Z, Wang B S, Zhang G C, Xu Z Y, Wu Y C 2011 *Appl. Phys. B* **103** 853
- [20] Pallas F, Herault E, Zhou J, Roux J F, Vitrant G 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 241113
- [21] Nawata K, Sato A, Asai K, Ito H, Minamide H 2011 *International Conference on Nonlinear Optics: Materials, Fundamentals and Applications* Kauai, USA, July 17-22, 2011 pNMC1
- [22] Nawata K, Abe T, Miyake Y, Sato A, Asai K, Ito H, Minamide H 2012 *Appl. Phys. Express* **5** 112401
- [23] Zhong K, Sun C L, Yao J Q, Xu D G, Xie X Y, Cao X L, Zhang Q L, Luo J Q, Sun D L, Yin S T 2013 *IEEE J. Quant. Electron.* **49** 375
- [24] Yang Q, Huo Y J, Duan Y S, Zhang Y Y 2013 *Acta Opt. Sin.* **33** 0514002 (in Chinese) [杨清, 霍玉晶, 段玉生, 张艳艳 2013 光学学报 **33** 0514002]
- [25] Angeluts A A, Bezotosnyi V V, Cheshev E A, Goltsman G N, Finkel M I, Seliverstov S V, Evdokimov M N, Gorbunkov M V, Kitaeva G Kh, Koromyslov A L, Kostyukov P V, Krivonos M S, Lobanov Yu V, Shkurinov A P, Sarkisov S Yu, Tunkin V G 2014 *Laser Phys. Lett.* **11** 015004
- [26] Zhao P, Ragam S, Ding Y J, Zotova I B 2012 *International Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)* San Jose, USA, May 6-11, 2012 pQF3G.2
- [27] Ding Y Q, Liu Y, Qi Y F, Zhang L, Guo B L, Wang R, Zhou J, Chen G H 2015 *Appl. Opt.* **54** 6616
- [28] Tang M, Minamide H, Wang Y Y, Notake T, Ohno S, Ito H 2011 *Opt. Express* **19** 779
- [29] Leyman R, Nikitichev D I, Bazieva N, Rafailov E U 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 171107
- [30] Zhao P, Ragam S, Ding Y J, Zotova I B 2011 *Opt. Lett.* **36** 4818

- [31] Zhao P, Ragam S, Ding Y J, Zotova I B 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 131106
- [32] Men S J, Liu Z J, Cong Z H, Li Y F, Zhang X Y 2015 *Opt. Laser Technol.* **68** 48
- [33] Majkic A, Zgonik M, Petelin A, Jazbinšek M, Ruiz B, Medrano C, Günter P 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 141115
- [34] Saito K, Tanabe T, Oyama Y 2012 *Opt. Photon. J.* **2** 201
- [35] Lin X M, Wang L, Ding Y J 2012 *Opt. Lett.* **37** 3687
- [36] Petersen E B, Shi W, Chavez-Pirson A, Peyghambarian N, Cooney A T 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 121119
- [37] Malinowski A, Lin D, Alam S U, Zhang Z, Ibsen M, Young J, Wright P, Ozanyan K, Stringer M, Miles R E, Richardson D J 2012 *Laser Phys. Lett.* **9** 350
- [38] Paul J R, Scheller M, Laurain A, Young A, Koch S W, Moloney J 2013 *Opt. Lett.* **38** 3654
- [39] Sasaki T, Tanabe T, Nishizawa J I 2014 *Opt. Photon. J.* **4** 8
- [40] Kiessling J, Fuchs F, Buse K, Breunig I 2011 *Opt. Lett.* **36** 4375
- [41] Huang J G, Lu J X, Zhou W, Tong J C, Huang Z M, Chu J H 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 120704 (in Chinese) [黄敬国, 陆金星, 周炜, 童劲超, 黄志明, 褚君浩 2013 物理学报 **62** 120704]
- [42] Huang J G, Huang Z M, Tong J C, Ouyang C, Chu J H, Andreev Y, Kokh K, Lanski G, Shaiduko A 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 081104
- [43] Liu P X, Xu D G, Li J Q, Yan C, Li Z X, Wang Y Y, Yao J Q 2014 *IEEE Photon. Technol. Lett.* **26** 494
- [44] Vodopyanov K L, Hurlbut W C, Kozlov V G 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 041104
- [45] Zhao P, Ragam S, Ding Y J, Zotova I B, Mu X D, Lee H C, Meissner S K, Meissner H 2012 *Opt. Lett.* **37** 1283
- [46] Kiessling J, Breunig I, Schunemann P G, Buse K, Vodopyanov K L 2013 *New J. Phys.* **15** 105014
- [47] Koichi M, Miyamoto K, Ujita S, Saito T, Ito H, Omatsu T 2011 *Opt. Express* **19** 18523
- [48] Miyamoto K, Lee A, Saito T, Akiba T, Suizu K, Omatsu T 2013 *Appl. Phys. B* **110** 321
- [49] Notake T, Tang M, Wang Y, Nawata K, Ito H, Minamide H 2011 *International Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)* Baltimore, USA, May 1–6, 2011, pJThB108
- [50] Notake T, Nawata K, Kawamata H, Matsukawa T, Qi F, Minamide H 2012 *Opt. Express* **20** 25850
- [51] Uchida H, Tripathi S R, Suizu K, Shibuya T, Osumi T, Kawase K 2013 *Appl. Phys. B* **111** 489
- [52] Fan S Z, Qi F, Notake T, Nawata K, Takida Y, Matsukawa T, Minamide H 2015 *Opt. Express* **23** 7611
- [53] Zhao P, Ragam S, Wang L, Ding Y J, Zotova I B, Mu X, Lee H C, Meissner S K, Meissner H 2012 *International Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)* San Jose, USA, May 6–11, 2012 pCTu1B.8
- [54] Ding Y J 2015 *J. Phys.: Conference Series* **594** 012012
- [55] Liu P X, Xu D G, Li Y, Zhang X Y, Wang Y Y, Yao J Q, Wu Y C 2014 *Europhys. Lett.* **106** 60001
- [56] Jin Y W, Cristescu S M, Harren F J M, Mandon J 2015 *Opt. Express* **23** 20418
- [57] Dolasinski B, Powers P E, Haus J W, Cooney A 2015 *Opt. Express* **23** 3669
- [58] Pashkin A, Junginger F, Mayer B, Schmidt C, Schubert O, Brida D, Huber R, Leitenstorfer A 2013 *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.* **19** 8401608
- [59] Akiba T, Akimoto Y, Tamura M, Suizu K, Miyamoto K, Omatsu T, Takayanagi J, Takada T, Kawase K 2013 *Appl. Opt.* **52** 8305
- [60] Saito K, Nagai Y, Yamamoto K, Maeda K, Tanabe T, Oyama Y 2014 *Opt. Photon. J.* **4** 213
- [61] Huang Y C, Wang T D, Lin Y H, Lee C H, Chuang M Y, Lin Y Y, Lin F Y 2011 *Opt. Express* **19** 24577
- [62] Chen T, Sun J Q, Li L S, Tang J G, Zhou Y J 2012 *IEEE Photon. Technol. Lett.* **24** 921
- [63] Chen T, Sun J Q, Li L S, Tang J G 2012 *J. Lightwave Tech.* **30** 2156
- [64] Saito K, Tanabe T, Oyama Y 2014 *Jpn. J. Appl. Phys.* **53** 102102
- [65] Saito K, Tanabe T, Oyama Y 2015 *J. European Opt. Soc.-Rapid Pubs.* **10** 15024
- [66] Jiang Y, Li D, Ding Y J, Zotova I B 2011 *Opt. Lett.* **36** 1608
- [67] Notake T, Nawata K, Matsukawa T, Kawamata H, Feng Q, Minamide H 2012 *International Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)* San Jose, USA, May 6–11, 2012 pJW4A.36
- [68] Li Y, Zhang J X, Zhang G Q, Wu L L, Fu P Z, Wu Y C 2011 *J. Cryst. Growth.* **327** 127
- [69] Li Y, Wu Z G, Zhang X Y, Wang L, Zhang J X, Wu Y C 2014 *J. Cryst. Growth.* **402** 53
- [70] Sun Z H, Liu X T, Wang X Q, Li L N, Shi X J, Li S G, Ji C M, Luo J H, Hong M C 2012 *Cryst. Growth. Design* **12** 6181
- [71] Yang Z, Dai Y Q, Hao H L, Jazbinsek M, Günter P 2013 *Adv. Mater. Res.* **760–762** 811
- [72] Chen H H, Ma Q, Zhou Y Q, Yang Z, Jazbinsek M, Bian Y Z, Ye N, Wang D, Cao H, He W L 2015 *Cryst. Growth. Design* **15** 5560
- [73] Kim P J, Jeong J H, Jazbinsek M, Choi S B, Baek I H, Kim J T, Rotermund F, Yun H, Lee Y S, Günter P 2012 *Adv. Func. Mater.* **22** 200
- [74] Kang B J, Baek I H, Jeong J H, Kim J S, Lee S H, Kwon O P, Rotermund F 2014 *Current Appl. Phys.* **14** 403
- [75] Jeong J H, Kang B J, Kim J S, Jazbinsek M, Lee S H, Lee S C, Baek I H, Yun H, Kim J, Lee Y S, Lee J H, Kim J H 2013 *Sci. Rep.* **3** 3200
- [76] Lu J, Hwang H Y, Li X, Lee S H, Kwon O P, Nelson K A 2015 *Opt. Express* **23** 22723
- [77] Brunner F D J, Lee S H, Kwon O P, Feurer T 2014 *Opt. Mater. Express* **4** 1586
- [78] Vicario C, Monoszalai B, Jazbinsek M, Lee S H, Kwon O P, Hauri C P 2015 *Sci. Rep.* **5** 14394
- [79] Vitiello M S, Tredicucci A 2011 *IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol.* **1** 76

- [80] Adams R W, Vizbaras A, Jang M, Grasse C, Katz S, Boehm G, Amann M C, Belkin M A 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 151114
- [81] Lu Q Y, Bandyopadhyay N, Slivken S, Bai Y, Razeghi M 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 131106
- [82] Vijayraghavan K, Adams R W, Vizbaras A, Jang M, Grasse C, Boehm G, Amann M C, Belkin M A 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 251104
- [83] Lu Q Y, Bandyopadhyay N, Slivken S, Bai Y, Razeghi M 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 251121
- [84] Lu Q Y, Bandyopadhyay N, Slivken S, Bai Y, Razeghi M 2013 *Opt. Express* **21** 968
- [85] Vijayraghavan K, Jiang Y F, Jang M, Jiang A T, Choutagunta K, Vizbaras A, Demmerle F, Boehm G, Amann M C, Belkin M A 2013 *Nat. Commun.* **4** 2021
- [86] Lu Q Y, Bandyopadhyay N, Slivken S, Bai Y, Razeghi M 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 221105
- [87] Lu Q Y, Slivken S, Bandyopadhyay N, Bai Y, Razeghi M 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 201102
- [88] Fujita K, Hitaka M, Ito A, Edamura T, Yamanishi M, Jung S Y, Belkin M A 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 251104
- [89] Vijayraghavan K, Jang M, Jiang A T, Wang X J, Troccoli M, Belkin M A 2014 *IEEE Photon. Tech. Lett.* **26** 391
- [90] Slivken S, Bandyopadhyay N, Bai Y, Lu Q Y, Razeghi M 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 231110
- [91] Jung S Y, Jiang A T, Jiang Y F, Vijayraghavan K, Wang X J, Troccoli M, Belkin M A 2014 *Nat. Commun.* **5** 4267
- [92] Jiang Y F, Vijayraghavan K, Jung S Y, Demmerle F, Boehm G, Amann M C, Belkin M A 2014 *J. Opt.* **16** 094002

## REVIEW

# Recent progress of tunable terahertz sources based on difference frequency generation\*

Chai Lu<sup>†</sup> Niu Yue Li Yan-Feng Hu Ming-Lie Wang Qing-Yue

(Ultrafast Laser Laboratory, College of Precision Instrument and Optoelectronics Engineering, Tianjin University, Key Laboratory of Opto-Electronics Information and Technique, Ministry of Education, Tianjin 300072, China)

( Received 22 December 2015; revised manuscript received 21 January 2016 )

### Abstract

Terahertz technology has been developed rapidly in the past 30 years. Numerous applications in medicine, biology, agriculture, materials, security, communication and astronomy have been demonstrated. Terahertz sources can be divided into narrowband (monochromatic) source and broadband source according to their spectral characteristics. From a spectral perspective, coherent broadband and narrowband terahertz sources are mutually complementary, each having its own characteristics and scope of applications. Broadband terahertz sources can be used for quick access to the hybrid spectra of rotational and vibrational molecular fingerprints or imaging in a wider spectral range. Narrowband terahertz source with good spectral resolution and sensitivity, is suitable for pump-probe, fine structure resolution of molecular fingerprints and terahertz remote detection and imaging. Therefore, developing the tunable high peak power and narrowband terahertz sources is very important for the applications in the detection and identification of molecular fingerprints.

The difference frequency generation is one of the most important techniques for obtaining widely tunable, high power and narrowband terahertz sources. In this review, the recent progress of tunable terahertz sources based on the difference frequency generation in the last five years is reviewed, including the two fields of optical laser-based difference frequency sources and quantum cascade laser-based difference frequency sources. For the former class, the experimental

\* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2011CB808101, 2014CB339800), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61377041, 61377047, 61322502), and the Program for Changjiang Scholars and Innovative Research Team in University, China (Grant No. IRT13033).

† Corresponding author. E-mail: lu\_chai@tju.edu.cn

results from reports with different difference frequency sources and several typical nonlinear crystals are classified, and the corresponding experimental techniques and results are introduced. For terahertz wave generation, different optical difference frequency sources by a dual-wavelength laser, double laser, a laser and an optical parametric oscillator (OPO), the signal and idler waves of an OPO, and double OPOs are demonstrated in increasing their tunabilities. Significant progress has been made in the nonlinear crystals used to generate terahertz wave by the difference frequency process, for example, by improving the property of inorganic crystals with ion doping, taking advantage of waveguide and PPLN structures, and especially developing novel nonlinear organic crystals.

For the quantum cascade laser-based difference frequency sources, the latest advances in the techniques of difference frequency generation and wavelength tunability are presented. GaAs-based terahertz quantum cascade lasers are powerful semiconductor THz sources but cryogenic cooling is still a necessity. Recently, difference frequency generation was combined with the mid-infrared quantum cascade laser technology, thus becoming a leading room temperature semiconductor source in the terahertz range. To improve the frequency tuning range in the difference frequency terahertz quantum cascade laser, wavelength tuning techniques of the inner cavity and the external cavity have been developed. The difference frequency generation quantum cascade terahertz laser source has been the only technique workable at room temperature for the quantum cascade laser so far, which opens the door for developing the compact and widely tunable room temperature terahertz sources.

**Keywords:** terahertz source, difference frequency generation, nonlinear crystal, quantum cascade laser

**PACS:** 07.57.Hm, 42.79.Nv, 42.70.Mp, 42.55.Px

**DOI:** [10.7498/aps.65.070702](https://doi.org/10.7498/aps.65.070702)