

文章编号: 1000-7032(2015)03-0361-05

GaSe 晶体的双光子吸收对太赫兹输出的影响

姜 可^{1,2}, 谢冀江^{1*}, 杨贵龙¹, 谢京江¹, 李殿军¹, 陈 飞¹

(1. 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所 激光与物质相互作用国家重点实验室, 吉林 长春 130033;

2. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 根据光整流效应, 利用超快激光脉冲泵浦 GaSe 晶体实现了 0.2 ~ 2.5 THz 的宽带太赫兹辐射输出。禁带中的电子在两个 800 nm 光子的作用下激发到导带中形成自由载流子, 进而吸收所产生的太赫兹辐射, 最终导致太赫兹的输出随泵浦功率的增加而趋于饱和。为了研究双光子吸收对太赫兹输出的影响, 测量了 800 nm 处的 GaSe 晶体的双光子吸收系数, 结果为 0.165 cm/GW。通过对太赫兹输出实验数据的拟合, 得到 GaSe 晶体中自由载流子对太赫兹输出的吸收截面为 $1 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$ 。本文的研究结果可用于优化 GaSe 晶体在强激光泵浦下的太赫兹转换效率。

关键词: GaSe 晶体; 双光子吸收; 太赫兹; 吸收截面

中图分类号: O437; TN248

文献标识码: A

DOI: 10.3788/fgxb20153603.0361

Two-photon Absorption Attenuated THz Generation in GaSe

JIANG Ke^{1,2}, XIE Ji-jiang^{1*}, YANG Gui-long¹, XIE Jing-jiang, LI Dian-jun¹, CHEN Fei¹

(1. State Key Laboratory of Laser Interaction with Matter, Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China;

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

* Corresponding Author, E-mail: laserxjj@163.com

Abstract: The broadband THz generation from 0.2 to 2.5 THz was measured as a function of pump intensity in a single pure gallium selenide crystal based on the optical rectification of ultrafast laser pulses. Two-photon absorption at 800 nm can generate free charge carriers which can absorb the generated THz radiation, and finally attenuate THz output. The result indicates that the pump intensity dependence of output THz radiation changes from square to sub-linear relationship and the saturation of output THz radiation appears at high pump intensity. To study the impact of two photon absorption on THz generation, the two photon absorption coefficient of GaSe at 800 nm is measured to be 0.165 cm/GW, which is determined by the measured nonlinear transmission. The THz output fitting result taking account of the free charge carrier absorption cross section of $1 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$ is consistent with the experiment data very well. This estimation result can be used to optimize the conversion efficient of THz generation in GaSe crystal under intense laser pump.

Key words: GaSe crystal; two photon absorption; THz generation; absorption cross section

收稿日期: 2014-10-23; 修订日期: 2014-11-17

基金项目: 激光与物质相互作用国家重点实验室开放基础研究课题(SKLLIM1012)资助项目

1 引 言

近年来,太赫兹 (THz) 辐射在光谱检测、材料学、生物医学、环境监测、空间通信和反恐等领域^[1]显现出巨大的科学研究价值和广阔的应用前景。THz 辐射源是 THz 辐射研究工作的基础。超快激光脉冲在 ZnTe、GaSe 和 LiNbO₃ 等非线性晶体中的光整流效应是实现宽带太赫兹辐射最常用的方法之一^[2]。其中, GaSe 晶体以其宽透光谱带、较低的吸收系数和较大的非线性系数等优良的光学性质^[3-4]被认为是产生 THz 辐射最具前景的非线性晶体之一^[5-7]。然而,在强激光泵浦下,泵浦光的双光子吸收会在晶体内部激发自由载流子,自由载流子会增加晶体对 THz 辐射的吸收进而降低其转换效率^[8-11]。因此在采用非线性晶体输出 THz 辐射时,必须考虑双光子吸收的影响。

到目前为止,对于 GaSe 晶体双光子吸收系数的测量主要集中在 700 ~ 900 nm 和 1 064 nm 波长处,且测量结果差异很大。根据已有结果,在 700 nm 波长处,双光子吸收系数主要分布在 0.16 ~ (6 ± 1.2) cm/GW^[11-14] 范围内,而在 1 064 nm 处是 1.07 ~ 110 cm/GW^[15-17]。研究双光子吸收对 THz 输出的影响,必须正确测量双光子吸收系数。本文利用超快激光脉冲对 GaSe 晶体在 800 nm 处的双光子吸收系数进行了测量,采用光整流的方法实现了 GaSe 晶体的宽带 THz 输出,并利用自由载流子在 THz 波段的吸收截面对 THz 输出与泵浦功率的关系进行了拟合与分析。

2 实 验

采用一台中心波长为 800 nm 的 Ti: sapphire 激光器泵浦一厚度为 1.7 mm 的 GaSe 晶体,脉冲宽度为 100 fs,重复频率为 1 kHz。GaSe 晶体光整流产生 THz 辐射的实验光路如图 1(a) 所示:激光光束分为一束泵浦光和一束较弱的探测光。入射到 GaSe 晶体处的泵浦光光斑半径为 1.5 mm,泵浦功率最大可调节至 16 GW/cm²,泵浦光垂直入射晶体的自然解理面。产生的 THz 辐射通过 THz 滤波片之后,由电光采样系统进行探测,采样系统主要由 1 mm 厚的 [110] ZnTe 晶体、λ/4 波片、渥拉斯顿棱镜和光电二极管组成。

图 1(b) 给出了在泵浦功率为 10.1 GW/cm² 时获得的 0.2 ~ 2.5 THz 的频谱分布和相应的 THz

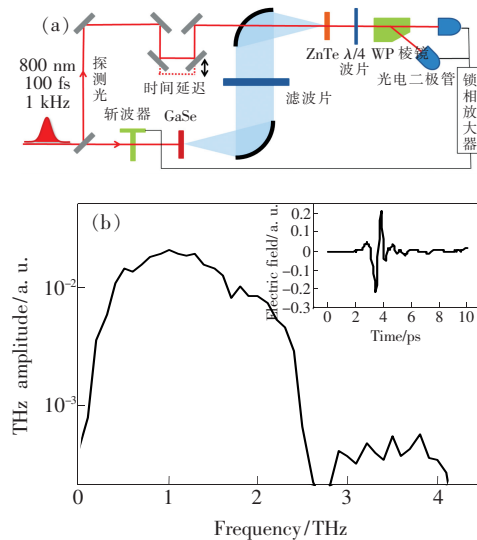


图 1 (a) GaSe 晶体输出 THz 辐射的实验光路示意图; (b) 泵浦功率为 10.1 GW/cm² 时的输出 THz 频谱分布。

Fig. 1 (a) Experiment setup geometry for THz generation in GaSe. (b) Output THz spectrum at 10.1 GW/cm² pump intensity. Insert is the relative THz electric field.

电场脉冲。通过调节泵浦功率,可以得到 THz 输出随泵浦功率的关系,见图 2。这里,我们定义 THz 输出为 THz 频谱中 THz 幅值的平方在频率下的积分。由于电光采样探测系统的特性,该定义下的 THz 输出与实际的 THz 输出功率成正比。根据光整流原理,在晶体吸收、相位匹配条件不变的情况下,THz 输出功率与泵浦功率的平方成正

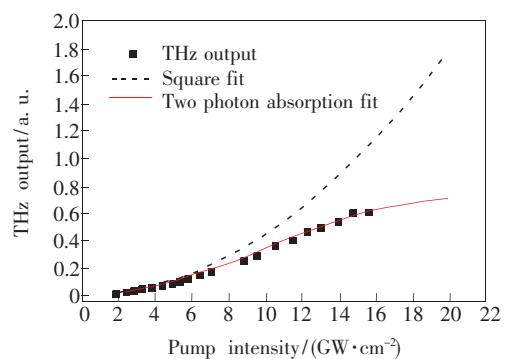


图 2 THz 输出随泵浦功率的变化趋势。黑色点为实验数据,点线是根据前 6 个实验数据点得到的平方拟合,实线为考虑到双光子吸收的拟合曲线。

Fig. 2 Relationship between pump intensity and THz output. The dots are the experiment data of THz output. The dot line is the quadratic fit according to the six data points at low pump intensity end. The solid line is the fit line considering the two-photon absorption.

比关系^[18]。根据该理论及图2中实验数据的前6个点,得到的平方拟合曲线如图2所示。在泵浦功率 $I_p < 5 \text{ GW/cm}^2$ 时,实验数据与平方拟合关系吻合;在 $I_p > 5 \text{ GW/cm}^2$ 后,由于双光子吸收的影响,THz 输出虽然仍随着泵浦功率的增大而增大,但实验结果开始小于平方拟合数据。与此同时,输出 THz 频谱分布没有发生明显变化。

考虑到现有文献中对 GaSe 晶体在 800 nm 处双光子吸收测量结果的分散性,为了确切地分析双光子吸收对 THz 输出的影响,本文对该实验条件下 GaSe 晶体的双光子吸收系数进行了测量。图3为太赫兹透过率随泵浦功率的变化曲线,由图3可知,透过率与泵浦功率呈非线性关系,随泵浦功率的增加而减小。

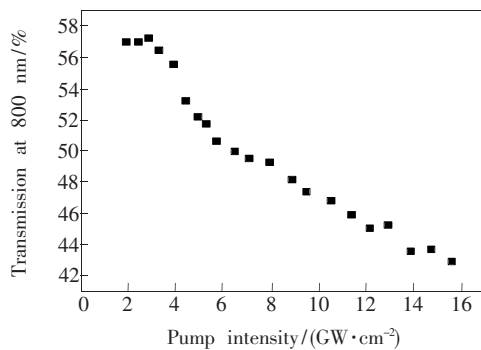


图3 GaSe 晶体在 800 nm 处的透过率随泵浦功率的变化
Fig.3 Pump intensity dependence of the measured nonlinear transmission of GaSe at 800 nm

3 结果与讨论

3.1 双光子吸收系数计算

在晶体内部,泵浦功率的衰减满足下面的公式:

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I - \beta I^2, \quad (1)$$

式中, α 和 β 分别为 GaSe 晶体在 800 nm 处的线性吸收系数和双光子吸收系数, z 为沿晶体光轴方向的传输距离。 $z=0$ 处的功率密度为 $I_0 = I_p$, $(1-R)$, $z=d$ 处的功率密度 $I_d = I_p T / (1-R)$,其中 R 为晶体表面的菲涅尔反射系数, T 为直接测得的透过率, d 为 GaSe 晶体的厚度。根据对该晶体样品之前的研究结果^[19],该晶体在 800 nm 处的折射率 $n=2.9182$,计算得到 $R=0.24$ 。

图3中,在泵浦功率 $I_p = 2 \text{ GW/cm}^2$ 附近, GaSe 晶体的透过率随泵浦功率的增加基本保持

不变。在此情况下,将晶体表面反射考虑在内之后,泵浦光通过晶体的损耗只有 1.15% 左右。考虑到 GaSe 晶体的厚度和对泵浦光的线性吸收,太赫兹输出对泵浦光损耗的影响可以忽略。通过计算得出 GaSe 晶体在 800 nm 处的线性吸收系数 $\alpha = 0.07 \text{ cm}^{-1}$ 。

根据式(1)可计算得出 GaSe 晶体在 800 nm 处的双光子系数随泵浦功率的变化,得出 $\beta = 0.165 \text{ cm/GW}$,如图4所示。该数值与前人的测量结果相近^[11,14]。图4中 $I_p < 5 \text{ GW/cm}^2$ 时,计算结果的不准确是因为泵浦功率很小、双光子吸收不明显造成的。

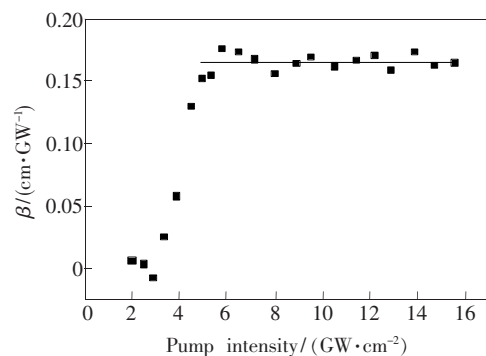


图4 GaSe 晶体在 800 nm 处的双光子吸收系数与泵浦功率的关系,图中直线为双光子吸收系数 $\beta = 0.165 \text{ cm/GW}$ 。

Fig.4 Measured two photon absorption coefficient of GaSe vs. 800 nm pump intensity. The straight line is $\beta = 0.165 \text{ cm/GW}$.

3.2 自由载流子对 THz 的吸收

GaSe 晶体的禁带宽度为 2.0 eV ^[20],在两个 800 nm 光子的激发下,电子从禁带跃迁到导带,形成自由载流子,进而吸收所产生的 THz 辐射,最终导致 THz 输出与泵浦功率的平方不再成正比关系。GaSe 晶体中自由载流子的密度可以通过下式来计算^[14]:

$$N = \frac{P(1-R)}{h\nu} \left(\alpha + \beta \frac{P(1-R)}{\frac{\tau}{2\sqrt{\ln 2}} \frac{1}{\sqrt{\pi}}} \right), \quad (2)$$

其中 P 为泵浦单脉冲能量密度, $h\nu = 1.55 \text{ eV}$ 为 800 nm 波长下的光子能量。在本文的实验条件下, GaSe 晶体内部的自由载流子密度变化范围为 $9.28 \times 10^{13} \sim 9.48 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 。

由于自由载流子的吸收,THz 输出实验结果与平方拟合结果之间的比值可以用 THz 输出的

透过率 T_{THz} 来表示:

$$T_{\text{THz}} = \exp(-\alpha_{\text{THz}}d), \quad (3)$$

式中 α_{THz} 为自由载流子对 THz 输出的吸收系数, 可以表示为

$$\alpha_{\text{THz}} = \sigma_{\text{THz}}N, \quad (4)$$

其中 σ_{THz} 为自由载流子对 THz 的吸收截面, N 为晶体中自由载流子密度。随着泵浦功率的增大, THz 输出频谱没有明显变化, 这表明由双光子吸收激发的自由载流子对 THz 的吸收不随频率而改变, 或者说吸收截面 σ_{THz} 与频率无关。图 2 中实线为根据式(2)~(4), 在考虑自由载流子对 THz 吸收的情况下拟合得到的 THz 输出。由图 2 可知得到的拟合曲线与实验结果十分吻合。拟合中采用的吸收截面为 $\sigma_{\text{THz}} = 1 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$, 该数值略大于 Chen 等^[11]的结果, 这是由于采用晶体的不同质量, 以及本文中三光子吸收的忽略所造成

的。根据图 2 中考虑双光子吸收的拟合结果, 可知在更强的激光脉冲泵浦下, 太赫兹的输出最终会趋向饱和。

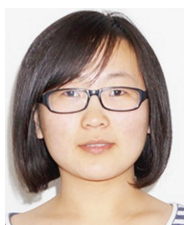
4 结 论

利用 GaSe 晶体, 基于超快激光脉冲的光整流效应实现了 0.2~2.5 THz 的太赫兹输出, 同时讨论了双光子吸收对太赫兹输出的影响。在本文的实验条件下, 测得的 GaSe 晶体在 800 nm 的双光子吸收系数为 0.165 cm/GW。双光子吸收会激发自由载流子, 而自由载流子会吸收太赫兹输出。利用自由载流子对太赫兹辐射的吸收截面 ($1 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$) 对实验数据进行了拟合与分析。结果表明, 太赫兹输出会随着泵浦功率的增加而逐渐趋于饱和, 在实际应用中要获得最佳转换效率必须选择合适的泵浦功率。

参 考 文 献:

- [1] Jepsen P U, Cooke D G, Koch M. Terahertz spectroscopy and imaging-modern techniques and applications [J]. *Laser Photon. Rev.*, 2011, 5(1):124-166.
- [2] Ferguson B, Zhang X C. Materials for terahertz science and technology [J]. *Nat. Mater.*, 2002, 1(9):26-33.
- [3] Ding Y J, Shi W. Widely tunable monochromatic THz sources based on phase-matched difference frequency generation in nonlinear-optical crystals: A novel approach [J]. *Laser Phys.*, 2006, 16(4):562-570.
- [4] Kaindl R A, Eickemeyer F, Woerner M, et al. Broadband phase-matched difference frequency mixing of femtosecond pulses in GaSe: Experiment and theory [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1999, 75(8):1060-1062.
- [5] Shi W, Ding Y J. A monochromatic and high-power terahertz source tunable in the ranges of 2.7–38.4 and 58.2–3 540 μm for variety of potential applications [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2004, 84(10):1635-1637.
- [6] Huber R, Brodschelm A, Tausser F, et al. Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 THz [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2000, 76(21):3191-3193.
- [7] Kübler C, Huber R, Leitendorfer A. Ultrabroadband terahertz pulses: Generation and field-resolved detection [J]. *Semi-cond. Sci. Technol.*, 2005, 20(7):S128-S133.
- [8] Bao X G, Sun G, Ding Y J, et al. Investigation of symmetries of second-order nonlinear susceptibility tensor of GaSe crystals in THz domain [J]. *Opt. Commun.*, 2011, 284(7):2027-2030.
- [9] Vidal S, Degert J, Tondusson M, et al. Impact of dispersion, free carriers, and two-photon absorption on the generation of intense terahertz pulses in ZnTe crystals [J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2011, 98(19):191103-1-3.
- [10] Hoffmann M C, Yeh K L, Hebling J, et al. Efficient terahertz generation by optical rectification at 1 035 nm [J]. *Opt. Express*, 2007, 15(18):11706-11713.
- [11] Chen C W, Lin Y S, Huang J Y, et al. Generation and spectral manipulation of coherent terahertz radiation with two-stage optical rectification [J]. *Opt. Express*, 2008, 16(18):14294-14303.
- [12] Vodopyanov K L, Mirov S B, Voevodin V G, et al. Two-photon absorption in GaSe and CdGeAs₂ [J]. *Opt. Commun.*, 1998, 155:47-50.
- [13] Zotova I B, Ding Y J. Spectral measurements of two-photon absorption coefficients for CdSe and GaSe crystals [J]. *Appl. Opt.*, 2001, 40(36):6654-6658.
- [14] Kulibekov A M, Allakhverdiev K, Guseinova D A, et al. Optical absorption in GaSe under high-density ultrashort laser

- pulses [J]. *Opt. Commun.*, 2004, 239(1-3):193-198.
- [15] Allakhverdiev K, Baykara R T, Joosten S, *et al.* Anisotropy of two-photon absorption in gallium selenide at 1 064 nm [J]. *Opt. Commun.*, 2006, 261(1):60-64.
- [16] Allakhverdiev K R. Two-photon absorption in layered TlGaSe_2 , TlInS_2 , TlGaS_2 and GaSe crystals [J]. *Solid State Commun.*, 1999, 111(5):253-257.
- [17] Marchev G, Tyazhev A, Panyutin V, *et al.* Some properties of the mixed $\text{GaS}_{0.4}\text{Se}_{0.6}$ nonlinear crystal in comparison to GaSe [J]. *SPIE*, 2011, 7917:79171G-1-11.
- [18] Tomasino A, Parisi A, Stivala S, *et al.* Wideband THz time domain spectroscopy based on optical rectification and electro-optic sampling [J]. *Sci. Rep.*, 2013, 3:3116-3120.
- [19] Jiang K, Xie J J, Li D J, *et al.* CO_2 SHG experiment and dispersion characteristics of GaSe crystal [J]. *J. Optoelectron. Laser* (光电子·激光), 2013, 24(5):903-907 (in Chinese).
- [20] Adachi S, Shindo Y. Optical constants of ϵ -GaSe [J]. *J. Appl. Phys.*, 1992, 71(1):428-431.



姜可(1988 -),女,山东聊城人,博士研究生,2010年于青岛大学获得学士学位,主要从事中红外非线性频率转换及宽带太赫兹辐射源方面的研究。
E-mail: jiangkeciomp@163.com



谢冀江(1959 -),男,江苏镇江人,研究员,1983年于哈尔滨科技大学获得学士学位,主要从事激光器及激光应用技术、非线性频率转换方面的研究。
E-mail: laserxjj@163.com

《发光学报》网上在线投稿通知

由于学报发展的需要,《发光学报》网站已经建成开通,欢迎广大作者浏览我们的网页并提出宝贵意见,共同建好这个为广大作者和读者进行交流以及展示作者相关科研成果的平台。《发光学报》网页上建有网上在线投稿平台,我们只接收网上在线投稿,欢迎大家使用。如有问题,请与我们联系:

E-mail: fgxbt@126.com, Tel: (0431)86176862,84613407

《发光学报》网址: <http://www.fgxb.org>

《发光学报》编辑部