

飞秒激光激发下本征 GaP 非线性吸收及 Kerr 效应的实验研究*

刘 丰¹⁾²⁾ 邢歧荣^{1)2)†} 胡明列¹⁾ 栗岩锋¹⁾ 王昌雷¹⁾²⁾ 柴 路¹⁾ 王清月¹⁾

1) (天津大学精密仪器与光电子工程学院, 超快激光研究室, 天津 300072)

2) (天津大学精密仪器与光电子工程学院, 太赫兹波研究中心, 天津 300072)

(2010 年 4 月 5 日收到; 2010 年 5 月 4 日收到修改稿)

采用掺镱光子晶体光纤飞秒激光放大器为抽运源, 搭建了偏振分辨的 Z-scan 实验系统. 实验研究了块状本征磷化镓 (GaP) 晶体的非线性吸收和非线性折射率系数. 研究证明, 在中心波长 1 μm 飞秒激光的作用下, 本征 GaP 晶体的非线性吸收主要为三光子吸收. 而且还表明本征 GaP 的非线性吸收和非线性折射率系数具有很强的各项异性、偏振相关性及饱和特性.

关键词: 磷化镓, Z-scan, Kerr 效应, 三光子吸收

PACS: 78.67.-n, 42.65.Hw, 42.55.Wd, 42.25.Bs

1. 引 言

磷化镓 (GaP) 半导体是一种表面硬度高, 热导率大, 宽波段透过的红外光学材料, 由于其优良的光学、机械和热学性能, 已被广泛应用于发光二极管、声光调制器和光限制器^[1,2]. 近年来, 由于 GaP 在 1 μm 波段激光激发下具有较大的共线相位匹配长度而被作为理想晶体用于产生高功率超宽带 THz 辐射脉冲^[3,4]. GaP 晶体本为中心对称晶体, 但在强偏振光激发下, 却表现出强烈的各向异性. 在纳秒和皮秒激光激发下, 关于 GaP 的非线性特性, 已经有一些研究结果^[5,6], 但在飞秒激光激发下的 GaP 非线性特性却没有被系统研究过. 与纳秒和皮秒激光激发相比, 飞秒激光以其相对小的单脉冲能量可以获得极高的峰值功率密度. 因此, 飞秒激光可以稳定激发介质的高阶非线性, 且不诱发强烈的热效应. 随着飞秒激光器技术的日益成熟, 特别是工作在 1040 nm 的掺镱光纤飞秒激光器已被广泛应用^[7-12] 于产生高功率超宽带 THz 辐射脉冲, 系统研

究飞秒激光激发下的 GaP 非线性特性成为必要.

Sheik-Bahae 等人提出的 Z-scan 方法^[13,14] 可以方便地测量样品的非线性折射率和非线性吸收特性. 为了研究 GaP 晶体非线性的角度依赖特性, 我们搭建了一种改进型偏振分辨的 Z-scan 实验系统. 在中心波长为 1040 nm 的飞秒激光抽运下, 系统研究了块状本征 GaP 晶体的非线性吸收和非线性折射率系数.

2. 实 验

本文提出的偏振分辨的 Z-scan 实验装置如图 1 所示. 抽运源为自制的大模场面积光子晶体光纤飞秒激光放大器^[15]. 输出脉冲参数为中心波长 1040 nm, 脉宽 61 fs, 重复频率 52 MHz, 最高输出平均功率 23 W. 线偏振的抽运光经过 750 Hz 的机械斩波器调制, 通过安装在电控旋转平移台上的半波片调整其偏振角度, 再经焦距 50.8 mm 的透镜聚焦成直径约 28 μm 的光斑, 投射到安装在电控微位平移台上可沿轴向平行移动的样品上. 实验中使用的样

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2006CB806002, 2007CB310408 和 2010CB327604), 国家高技术研究发展计划 (批准号: 2007AA03Z447), 国家自然科学基金 (批准号: 60578037, 60838004 和 60678012), 天津市科技支撑专项基金 (批准号: 8ZCKFZC28000), 高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 200800560026), 全国优秀博士学位论文作者专项资金 (批准号: 2007B34) 和教育部新世纪优秀人才支持计划 (批准号: NCET-07-0597) 资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: xingqr@yahoo.com

品为 1 mm 厚的 $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ 和 $\langle 111 \rangle$ 切割的本征 GaP 晶体. 透过样品的激光被远场小孔限束, 然后由透镜聚焦到光电二极管探测器上. 探测到的光强由锁相放大器读取并存储在计算机上. 当半波片角度固定, 即固定入射光的偏振方向时, 系统为一典型的 Z-scan 装置, 可以测量开孔和闭孔的远场透射功率曲线, 由其归一化透射率曲线可以计算获得样品非线性折射率系数及非线性吸收系数. 测量偏振分辨的非线性参数时, 将样品固定在闭孔曲线的峰谷处, 分别测量其开孔和闭孔的偏振依赖透射功率曲线, 其结果便可以反映非线性特性与偏振方向的关系.

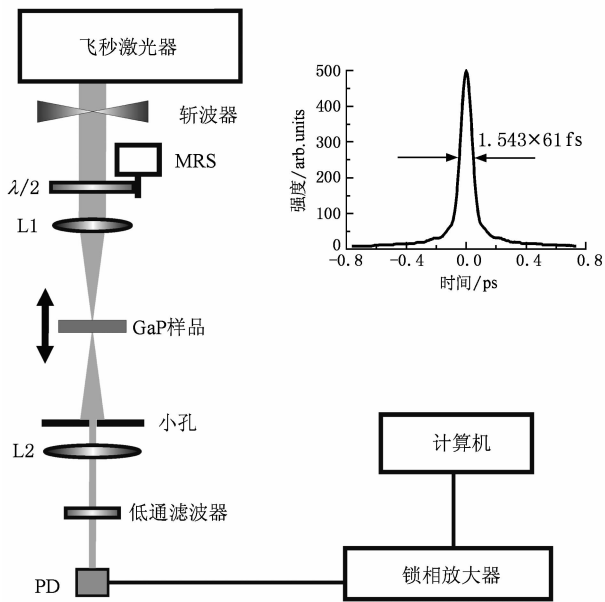


图1 实验系统示意图(插图为抽运光脉冲自相关曲线, MRS 为电控旋转平台, L1, L2 为聚焦透镜, PD 为探测光电二极管)

3. 实验结果及分析

标准 Z-scan 方法测量的归一化透射率曲线可表示为^[13]

$$T(z) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} P_T(z, \Delta\Phi_0(t)) dt}{S \int_{-\infty}^{\infty} P_i(t) dt}, \quad (1)$$

$$\Delta\Phi_0(t) = kn_2 I_0(t) L_{\text{eff}}, \quad (2)$$

其中 $P_i(t)$ 为瞬时入射光功率, $I_0(t)$ 是轴上焦点处光强, S 为小孔透过率, $P_T(t)$ 为小孔透射光功率, $\Delta\Phi_0(t)$ 为轴上焦点处的非线性相移, n_2 为样品的非线性折射率系数, $L_{\text{eff}} = (1 - e^{-\alpha_0 L})/\alpha_0$ 为晶体有

效厚度, L 和 α_0 分别为晶体实际厚度和线性吸收系数.

由于抽运光通过样品的时候同时存在线性吸收和多光子吸收, 透射光强可表示为

$$\frac{dI}{dz} = -(\alpha_0 + \sum_n \beta_n I^n)I, \quad (3)$$

其中 β_n (整数 $n \geq 1$) 为 $n + 1$ 光子吸收系数.

由于 GaP 晶体属于 III-V 族间接带隙半导体, 具有驼峰型的最低阶导带结构, 其在 300 K 室温条件下的间接带隙为 2.27 eV, 直接带隙为 2.79 eV^[16]. 若 GaP 对 1040 nm (1.19 eV) 波段的非线性多光子吸收为间接带隙跃迁, 则应为双光子吸收 (2PA)^[17], 抽运光将载流子从价带激发到间接导带上; 若为直接带隙跃迁, 则应为三光子吸收 (3PA) 过程^[5], 载流子被激发到直接导带上. 为了判断 GaP 晶体的非线性吸收机理, 我们对归一化的吸收曲线进行了分析. 图 2 所示为 800 mW 抽运条件下的开孔归一化透射率曲线 (图中圆点). 当使用双光子吸收理论拟合时, 取 $\beta = 0.95 \text{ cm/GW}$, 拟合曲线如图中虚线, 其轨迹明显比实验数据宽; 使用三光子吸收理论拟合时, 取 $\beta_2 = 0.06 \text{ cm}^3/\text{GW}^2$, 拟合结果如图中实线, 与实验结果符合很好. 可见, 用 1040 nm 超短脉冲激发 GaP 晶体, 其非线性吸收中三光子吸收起主导作用.

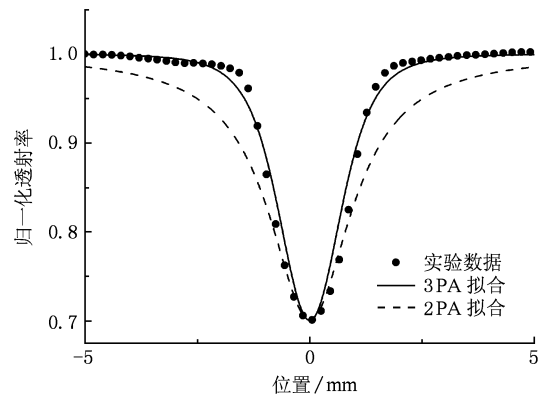


图2 开孔归一化透射率及理论拟合结果

当改变抽运光功率, 即改变入射光功率密度, 发现非线性特征曲线随之发生变化. 其结果如图 3 所示, 图 3(a) 为闭孔透射率曲线, 表征了晶体的光克尔效应^[18]. 其先谷后峰的结构表明, 在此实验条件下 GaP 晶体的非线性折射率系数 $n_2 > 0$. 图 4(a) 显示, 随入射光功率密度增加, 闭孔曲线的峰谷值增大. 同时, 曲线形状也变得不再对称, 谷底逐渐变

宽. 这是由于随着入射光的增强, 非线性折射率所引入的附加非线性相位增加所致. 该实验结果与以前报导的理论结果^[19]相一致. 图 3(b) 为 GaP 的开孔透射率曲线. 图中显示出, 随着功率密度增大, GaP 的非线性吸收增强, 透射率下降.

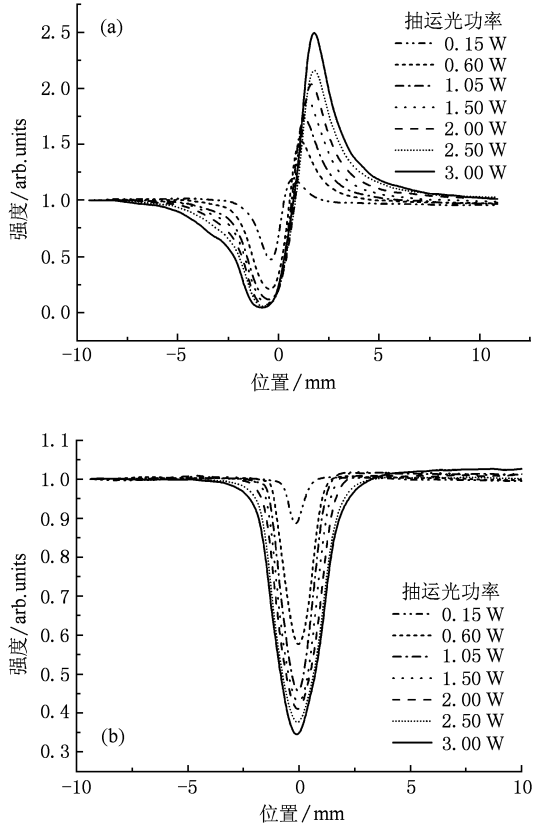


图 3 非线性特性随抽运功率的变化 (a) 归一化闭孔透射率曲线; (b) 归一化开孔透射率曲线

由图 3 所示实验结果结合(1)–(3)式可以得到非线性折射率系数 n_2 、折射率变化量 Δn 和非线性吸收系数 β_2 随抽运光功率密度变化的规律, 结果如图 4 所示. 它们均显示出随轴上焦点处功率密度增大而饱和的特性. 这种饱和特性是由于 GaP 晶体的边带非线性吸收所致, 依据 Moreels 的理论模型^[20], 对 Δn 进行理论拟合, 获得 GaP 的非线性折射率系数的饱和光强为 $I_s = 180 \text{ GW/cm}^2$.

闪锌矿族 $\bar{4}3m$ 系晶体三种典型取向的非线性折射率系数随激发光偏振方向变化的关系^[21]如下:

$$n_{2[100]} = C_1 + C_2 \left[1 - \frac{1}{2} \sin^2 2\theta \right], \quad (4)$$

$$n_{2[110]} = C_1 + C_2 \left[1 - \frac{1}{2} (4 \sin^2 \theta - 3 \sin^4 \theta) \right], \quad (5)$$

$$n_{2[111]} = C_1 + \frac{1}{2} C_2, \quad (6)$$

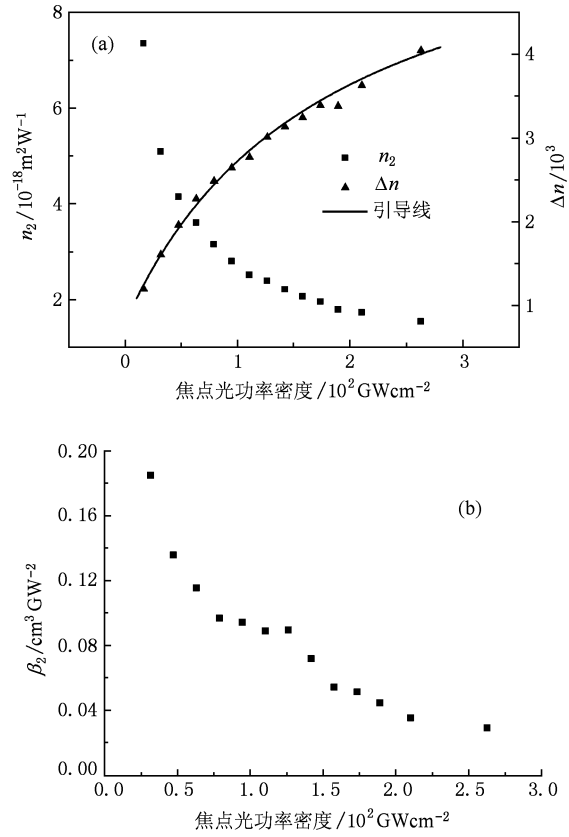


图 4 GaP 晶体非线性特性参数随抽运功率密度的变化 (a) 非线性折射率系数 n_2 与折射率变化量 Δn ; (b) 非线性吸收系数 β_2

$$C_1 = \frac{12\pi}{n_0} (2\chi_{1122} + \chi_{1221}),$$

$$C_2 = \frac{12\pi}{n_0} (\chi_{1111} - 2\chi_{1122} - \chi_{1221}), \quad (7)$$

与我们的实验结果相匹配, 三光子吸收系数表示如下:

$$\beta_{2[100]} = K \text{Im}(\chi_{1111}) \left(1 - \frac{\sigma}{2} \sin^2 2\theta \right), \quad (8)$$

$$\beta_{2[110]} = K \text{Im}(\chi_{1111}) \left[1 - \frac{\sigma}{2} (1 + 3 \cos^2 \theta) \sin^2 \theta \right], \quad (9)$$

$$\beta_{2[111]} = K \text{Im}(\chi_{1111}) \left(1 - \frac{\sigma}{2} \right), \quad (10)$$

$$K = \frac{\omega}{2n^2 c^2 \epsilon_0}, \quad (11)$$

其中, χ_{1111} , χ_{1122} 和 χ_{1221} 为立方晶体结构中独立的三阶非线性张量系数, ϵ_0 为真空电容率, σ 为定义表征非线性张量各向异性的参数^[22].

在固定入射光的平均功率为 800 mW 的情况下, 通过连续旋转抽运光的线偏振方向来系统研究 GaP 晶体非线性吸收和非线性折射率系数的各项异

性和偏振相关性. 通过安置在电控旋转平台 MRS 上的半波片来实现这种抽运光线偏振方向的连续控制. 在改进的 Z-scan 实验装置上, 分别对三种典型切割的 GaP 晶体进行测量: 控制微位移平移台, 使样品分别停在闭孔曲线峰和谷的位置, 再启动旋转平台, 分别测得与开孔和闭孔对应随抽运光偏振角度变化的透射光功率 $P_{OA}(\theta)$ 和 $P_{CA}(\theta)$. 对测得的曲线作 $P_{CA}(\theta)/P_{OA}(\theta)$ 归一化处理, 可以获得非线性

性折射率系数和非线性吸收系数随激发光偏振角变化关系的实验曲线, 结果如图 5 所示. 对于 $\langle 100 \rangle$ 晶体, 非线性折射率系数和非线性吸收系数在一个周期 (偏振方向 360° 变化) 中为四次等幅振荡, $\langle 110 \rangle$ 晶体的结果在一个周期中具有两个次极大值, $\langle 111 \rangle$ 晶体具有恒定的非线性特性. 实验结果与理论符合得很好, 并且显示了本征 GaP 晶体的非线性吸收特性与 Kerr 效应呈现相同的激发光偏振相关性.

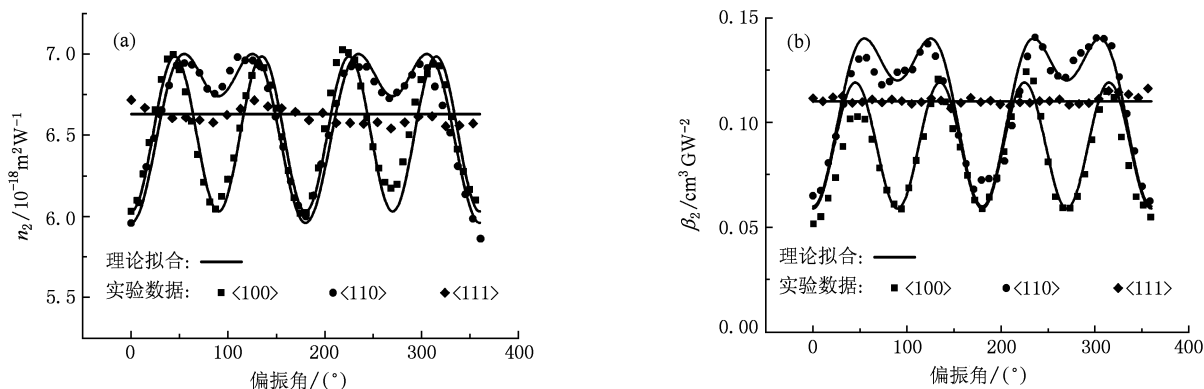


图 5 偏振分辨的非线性特征参数 (a)非线性折射率系数; (b)非线性吸收系数

表 1 和表 2 中分别列出了三种切向 GaP 晶体在 1040 nm 800 mW 飞秒激光抽运条件下非线性折射率系数和非线性吸收系数的典型值.

表 1 非线性折射率系数 $n_2 (10^{-18} \text{ m}^2/\text{W})$

晶体切向	极大值	极小值	凹陷(次极大)
$\langle 100 \rangle$	6.98	6.03	无
$\langle 110 \rangle$	6.99	5.96	6.74
$\langle 111 \rangle$	6.63	无	无

表 2 非线性吸收系数 $\beta_2 (\text{cm}^3/\text{GW}^2)$

晶体切向	极大值	极小值	凹陷(次极大)
$\langle 100 \rangle$	0.12	0.06	无
$\langle 110 \rangle$	0.14	0.06	0.12
$\langle 111 \rangle$	0.11	无	无

4. 结 论

本文介绍了一种改进型偏振分辨的 Z-scan 实验装置. 采用自行研制的光子晶体光纤飞秒激光器为抽运源, 系统研究了三种典型切割的块状本征 GaP 晶体的非线性折射率和非线性吸收特性. 实验证明了在波长为 1040 nm、脉宽 61 fs 的激光激发条件下, 本征 GaP 晶体在室温下的非线性吸收主要为三光子吸收, 非线性吸收和非线性折射率系数随抽运光功率增高出现了饱和现象; 实验结果显示, GaP 的非线性吸收和非线性折射率系数具有强烈的各项异性和对激发光的偏振相关性. 给出了 GaP 晶体三种取向的典型非线性参数的实验测量结果. 为 GaP 的应用增补了飞秒激光工作条件下的实验数据.

[1] Fuss I, Smart D 1991 *Appl. Opt.* **30** 4526
 [2] Mao D Q, Li M F, Ren S Y 1984 *Acta Phys. Sin.* **33** 897 (in Chinese) [茅德强、李名复、任尚元 1984 *物理学报* **33** 897]
 [3] Liu F, Song Y J, Xing Q R, Hu M L, Li Y F, Wang C L, Chai

L, Zhang W L, Zheltikov A M, Wang C Y *IEEE Photonics Technology Letters* **22** 814
 [4] Chang G, Divin C J, Liu C H, Williamson S L, Galvanauskas A, Norris T B 2006 *Optics Express* **14** 7909

- [5] Nathan V, Guenther A H, Mitra S S 1985 *J. Opt. Soc. Am. B* **2** 294
- [6] Rychnovsky S, Allan G R, Venzke C H, Boggess T F 1994 *Opt. Lett.* **19** 527
- [7] Song Y J, Hu M L, Liu Q W, Li Y J, Chen W, Chai L, Wang C Y 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 5045 (in Chinese) [宋有建、胡明列、刘庆文、李进延、陈伟、柴路、王清月 2008 物理学报 **57** 5045]
- [8] Song Y J, Hu M L, Liu B W, Chai L, Wang C Y 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 6425 (in Chinese) [宋有建、胡明列、刘博文、柴路、王清月 2008 物理学报 **57** 6425]
- [9] Zhang C, Hu M L, Song Y J, Zhang X, Chai L, Wang C Y 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 7727 (in Chinese) [张弛、胡明列、宋有建、张鑫、柴路、王清月 2009 物理学报 **58** 7727]
- [10] Zhang Y Y, Zhang C, Hu M L, Wang S J, Song Y J, Chai L, Wang C Y 2010 *Chin. Phys. B* **19** 014212
- [11] Zhang X, Hu M L, Song Y J, Chai L, Wang C Y 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 1863 (in Chinese) [张鑫、胡明列、宋有建、柴路、王清月 2010 物理学报 **59** 1863]
- [12] Ouyang C M, Song Y J, Wang C Y, Zhao H, Chai L, Hu M L 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 3936 (in Chinese) [欧阳春梅、宋有建、王清月、赵慧、柴路、胡明列 2010 物理学报 **59** 3936]
- [13] Sheik-Bahae M, Said A A, Wei T H, Hagan D J, Van Stryland E W 1990 *IEEE J. Quantum Electron.* **26** 760
- [14] Liu S M, Zhao H E, Guo R, Wang D Y, Gao Y M, Huang C F, Lu Y 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 1735 (in Chinese) [刘思敏、赵红娥、郭儒、汪大云、高垣梅、黄春福、陆猗 2004 物理学报 **53** 1735]
- [15] Song Y J, Hu M L, Wang C L, Tian Z, Xing Q R, Chai L, Wang C Y 2008 *IEEE Photonics Technology Letters* **20** 1088
- [16] Madelung O 2004 *Semiconductors: Data Handbook* (Berlin: Springer Verlag) p366—367
- [17] Ma H, Ma G H, Ma H L, Tang X H 2007 *Chin. Phys.* **16** 3873
- [18] Zhou W Y, Tian J G, Zang W P, Liu Z B, Zhang C P, Zhang G Y 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 0620 (in Chinese) [周文远、田建国、臧维平、刘智波、张春平、张光寅 2004 物理学报 **53** 0620]
- [19] Chen S Q, Liu Z B, Zang W P, Tian J G, Zhou W Y, Zhang C P 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 1211 (in Chinese) [陈树琪、刘智波、臧维平、田建国、周文远、张春平 2006 物理学报 **55** 1211]
- [20] Moreels I, Kockaert P, Van Thourhout D, Hens Z 2007 *Proceedings Symposium IEEE/LEOS Benelux Chapter Brussels, Belgium* p43
- [21] Deng H 1980 *Chinese Journal of Lasers* **9** 38 (in Chinese) [邓和 1980 中国激光 **9** 38]
- [22] Dvorak M D, Schroeder W A, Andersen D R, Smirl A L, Wherrett B S 1994 *IEEE J. Quantum Electron.* **30** 256

Experimental study on nonlinear absorption and Kerr effect in undoped GaP induced by femtosecond laser^{*}

Liu Feng¹⁾²⁾ Xing Qi-Rong^{1)2)†} Hu Ming-Lie¹⁾ Li Yan-Feng¹⁾
Wang Chang-Lei¹⁾²⁾ Chai Lu¹⁾ Wang Qing-Yue¹⁾

1) (*Ultrafast Laser Laboratory, College of Precision Instrument and Optoelectronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China*)

2) (*Center for Terahertz Waves, College of Precision Instrument and Optoelectronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China*)

(Received 5 April 2010; revised manuscript received 4 May 2010)

Abstract

A modified Z-scan experimental setup based on a Yb-doped photonic crystal fiber amplifier was used to achieve polarization-resolved measurement of the nonlinear properties of bulk intrinsic GaP. The experiment results reveal that three-photon absorption dominated the nonlinear absorption processes at room temperature. The anisotropy and crystal orientation dependence of the nonlinear absorption and nonlinear refractive index was experimentally studied and the nonlinearities showed saturation at high pump intensities.

Keywords: gallium phosphide, Z-scan, Kerr effect, three-photon absorption

PACS: 78.67.-n, 42.65.Hw, 42.55.Wd, 42.25.Bs

^{*} Project supported by the 973 Project of China (Grant Nos. 2006CB806002, 2007CB310408 and 2010CB327604), the 863 Project of China (Grant No. 2007AA03Z447), the National Natural Science Foundation of China (NSFC) (Grant Nos. 60578037, 60838004 and 60678012), the Major Project of Tianjin Sci-Tech Support Program (Grant No. 8ZCKFZC28000), the Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education (Grant No. 200800560026), FANEDD (Grant No. 2007B34), NCET (Grant No. NCET-07-0597).

[†] Corresponding author. E-mail: xingqr@yahoo.com