

强太赫兹脉冲产生及硒化镓晶体非线性效应研究

索鹏¹, 王晨¹, 李高芳², 孙凯文¹, 张文杰¹, 林贤¹, 黄志明³, 马国宏^{1*}¹上海大学物理系, 上海 200444;²上海电力大学电子与信息工程学院, 上海 200090;³中国科学院上海技术物理研究所红外物理国家重点实验室, 上海 200083

摘要 为探索单周期或亚周期的强场太赫兹脉冲抽运下各种材料的非线性光学响应, 基于铌酸锂(LiNbO₃)晶体, 采用飞秒脉冲倾斜波前技术, 获得了单脉冲能量为 2.6 μJ、峰值场强为 632 kV/cm 的强太赫兹脉冲输出, 并在该辐射源的基础上搭建了太赫兹抽运-光探测系统。利用该系统研究了硒化镓(GaSe)晶体的非线性光学响应, 观测到亚周期的太赫兹脉冲诱导的光学双折射, 其引起的相位变化与普克尔斯效应和克尔效应相关。研究结果为强场太赫兹抽运下介质的非线性效应分析提供了思路, 为材料的电光系数和非线性折射率系数的测定提供了借鉴。

关键词 材料; 铌酸锂晶体; 倾斜波前; 强太赫兹脉冲; 非线性效应

中图分类号 O437 文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL230798

1 引言

得益于飞秒激光技术的快速发展, 可见-近红外波段的超快非线性过程已经得到了广泛的研究, 相应的研究手段相对成熟。然而, 受限于高稳定性、高强度的太赫兹脉冲辐射源, 关于单周期或亚周期的强太赫兹脉冲诱导的高阶非线性行为(如太赫兹高次谐波^[1-2]、克尔效应^[3-4]、饱和吸收^[5]、自相位调制^[6]及交叉相位调制^[7]等)的研究鲜有报道。亚周期内的瞬态介电常数调制对应于材料的光学性质在很宽的频率范围内的变化。研究亚周期强太赫兹场与物质的相互作用对于探索、理解各种新奇的非线性现象具有重要意义, 时间分辨的强太赫兹光谱已成为研究不同物质系统中超快动力学及非线性光与物质相互作用的强有力的光谱学工具。同时, 利用亚周期高强度脉冲可以实现多种元激发的相干调控。光学介质的折射率随光强变化是非线性光学中的一种基本现象, 这种现象导致了光的自作用效应^[8], 包括光的自相位调制、自聚焦或自散焦。透明介质中引起这些自作用效应的非线性响应的强度依赖于介质的线性和非线性折射率系数, 因此, 这些参数的测定对于非线性晶体的应用具有重要的意义^[9]。

目前, 产生强太赫兹脉冲辐射的方法有多种。其中, LiNbO₃晶体有着非常大的有效非线性系数($d_{33}=168$ pm/V)^[10]、非常高的损伤阈值及较大的能隙, 避免了双光子吸收的发生, 因此基于 LiNbO₃晶体的光学整流效应成为利用光子学方法获取强太赫兹脉冲源的主

要的手段之一^[11-12]。为了实现晶体中的速度匹配, 需要利用超快脉冲的倾斜波前技术^[13]。该技术利用衍射光栅使飞秒激光脉冲的强度前沿倾斜, 使得抽运光的群速度等于太赫兹脉冲的相速度, 进而获得高效率的太赫兹脉冲输出^[14]。利用该技术产生的亚周期强太赫兹脉冲源, 可以在超快时间尺度上相干探测、操控材料的光学特性, 进而研究各类基础物理, 这种方法有助于发现新现象、揭示新机理^[15]。

GaSe 是一种六方层状结构的负单轴晶体, 室温下的带隙为 2.0 eV^[16], 具有较大的二阶非线性系数($d_{22}=54$ pm/V)^[17]和较宽的光学透明窗口, 特别是太赫兹波段的吸收系数很小($\alpha_{\text{THz}}=0.07$ cm⁻¹)^[18]。作为一种综合性能优异的非线性材料, GaSe 在超快光电子器件和非线性光学晶体等领域中有着广泛的应用。在太赫兹技术领域, GaSe 可作为太赫兹发射器^[19-21]和太赫兹探测晶体^[22-23], 相关研究已经有了大量报道, 而强太赫兹电磁脉冲诱导的非线性响应还未得到揭示。当 GaSe 作为太赫兹探测晶体时, 基于与太赫兹电场成正比的普克尔斯效应(二阶非线性效应), 可对太赫兹电场进行重构。三阶的克尔效应则与太赫兹电场的平方成正比。当太赫兹电场足够强时, 可以同时诱导普克尔斯效应与克尔效应。

为了探索强太赫兹脉冲抽运下材料的非线性效应, 本文基于 LiNbO₃晶体, 采用倾斜波前技术, 实现了 2.6 μJ 的单太赫兹脉冲能量输出, 聚焦后的场强可达 632 kV/cm。在强太赫兹辐射源的基础上搭建了强太

收稿日期: 2023-05-05; 修回日期: 2023-05-19; 录用日期: 2023-05-25; 网络首发日期: 2023-06-05

基金项目: 国家自然科学基金(92150101)

通信作者: *ghma@staff.shu.edu.cn

赫兹抽运-光探测光谱系统。利用该系统对非线性晶体 GaSe 进行了测试研究,观测到亚周期太赫兹脉冲诱导的 GaSe 在光学频段上的折射率系数扰动,其是二阶的普克尔斯效应和三阶的克尔效应引起的。

2 实验装置

用于太赫兹非线性效应研究的实验构置如图 1 所示。该光谱系统被钛蓝宝石再生放大器输出的飞秒激光脉冲驱动,其可以提供单脉冲能量为 2 mJ、中心波长为 780 nm、重复频率为 1 kHz、脉宽为 120 fs 的激光源。飞秒激光进入系统后,一个分束镜将一小部分光分出以取样太赫兹脉冲诱导的材料的双折射信号,其余 90% 的能量用于抽运 LiNbO₃ 晶体以产生强太赫兹脉冲。刻线密度为 1800 line/mm 的反射光栅用于实现抽运光的波前倾斜,其中入射角和一级衍射角分别为 ~35° 和 ~56°。光栅后的半波片将抽运光的偏振由水平变为竖直方向,使之与 LiNbO₃ 晶体的光轴平行,以充分利用 LiNbO₃ 最大的有效非线性系数 d_{33} 。4f 成像系统由两个焦距分别为 250 mm 和 150 mm 的双凸

透镜组成,它们将经过反射光栅的脉冲前沿倾斜的抽运光成像到 LiNbO₃ 晶体上。该成像系统还可以使抽运光在竖直方向缩束,提高了抽运光的能量密度。三棱柱形 LiNbO₃ 晶体的切割角为 62°, 竖直方向为 z 轴,入射面镀有宽带增透膜,太赫兹出射面输出的太赫兹偏振是竖直方向的。强太赫兹脉冲经过一系列离轴抛物面镜后聚焦到样品位置处。强度较弱的 780 nm 探测光束在样品处与太赫兹抽运光束重合并透过样品,其偏振方向与太赫兹波的偏振方向平行。采用四分之一波片、沃拉斯顿棱镜和平衡探测器的组合对材料折射率的变化进行取样。一对线栅太赫兹偏振片被放置于第二个离轴抛物面镜后用来调节太赫兹脉冲的电场强度。其中:第二个线栅偏振片的线栅方向保持水平不变,使入射到样品上的太赫兹波为竖直偏振;旋转第一个线栅偏振片,使太赫兹波的场强衰减。整个实验在室温、空气氛围中进行。值得一提的是,当将样品放置于第三和第四个离轴抛物面镜之间的焦平面上时,该系统还可以进行强太赫兹时域光谱测量。

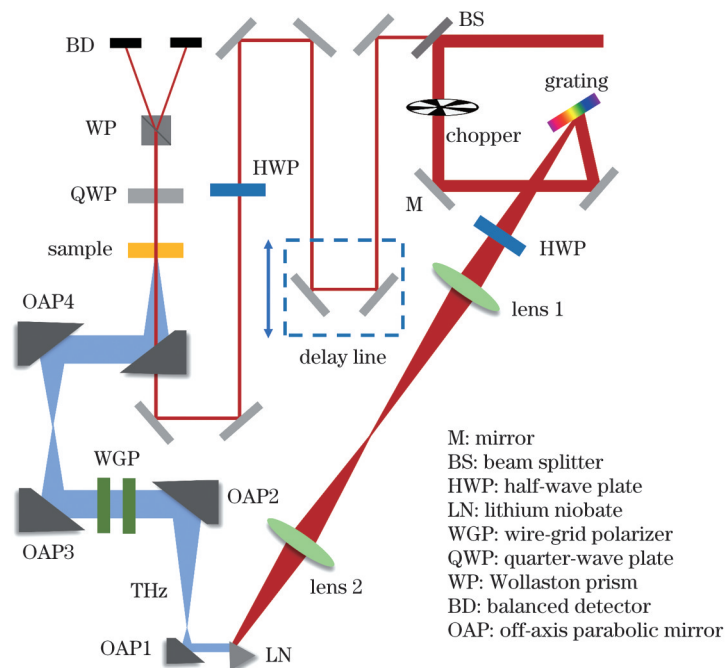


图 1 强太赫兹抽运-光探测系统的构置图

Fig. 1 Configuration diagram for strong terahertz pump-optical detection system

采用热释电太赫兹功率计对样品位置处的太赫兹功率进行了测量,测量到最大的功率为 2.6 mW。使用刀片法对太赫兹光斑大小进行测量,测量到的水平和竖直方向的结果如图 2(a)、(b) 所示,其中 FWHM 为半峰全宽。通过高斯拟合得到水平和竖直方向的太赫兹光斑尺寸分别为 1.18 mm 和 0.95 mm。

为了获取样品位置处太赫兹脉冲的时域波形和场强,用厚度为 0.5 mm、取向为 <110> 的 ZnTe 晶体进行了电光取样测量。在该过程时,强太赫兹电场会导

致采集到的波形失真,为了避免这种现象,通过旋转第一个线栅偏振片大幅减小太赫兹脉冲的强度。探测到的太赫兹脉冲的时域信号以及傅里叶变换后的频域信号分别如图 2(c)、(d) 所示,可以看到该系统的强太赫兹脉冲是半个周期,中心频率为 0.8 THz。太赫兹脉冲的能量计算公式^[24-25]为

$$W_{\text{THz}} = \frac{\tau A |E_{\text{THz}}^{\text{pk}}|^2}{2\eta_0}, \quad (1)$$

式中: W_{THz} 为太赫兹脉冲的能量; τ 为太赫兹脉冲的脉

宽; A 为太赫兹脉冲的光斑面积; $E_{\text{THz}}^{\text{pk}}$ 为太赫兹脉冲的峰值电场; η_0 为自由空间阻抗。根据式(1)可计算得到样品位置处的太赫兹峰值场强最大为 632 kV/cm。

用于实验的 GaSe 晶体尺寸为 15.0 mm × 15.0 mm × 0.5 mm, 取向为 c 切。实验时利用线栅偏振片对太赫兹功率进行调节以进行太赫兹场强依赖的实验。

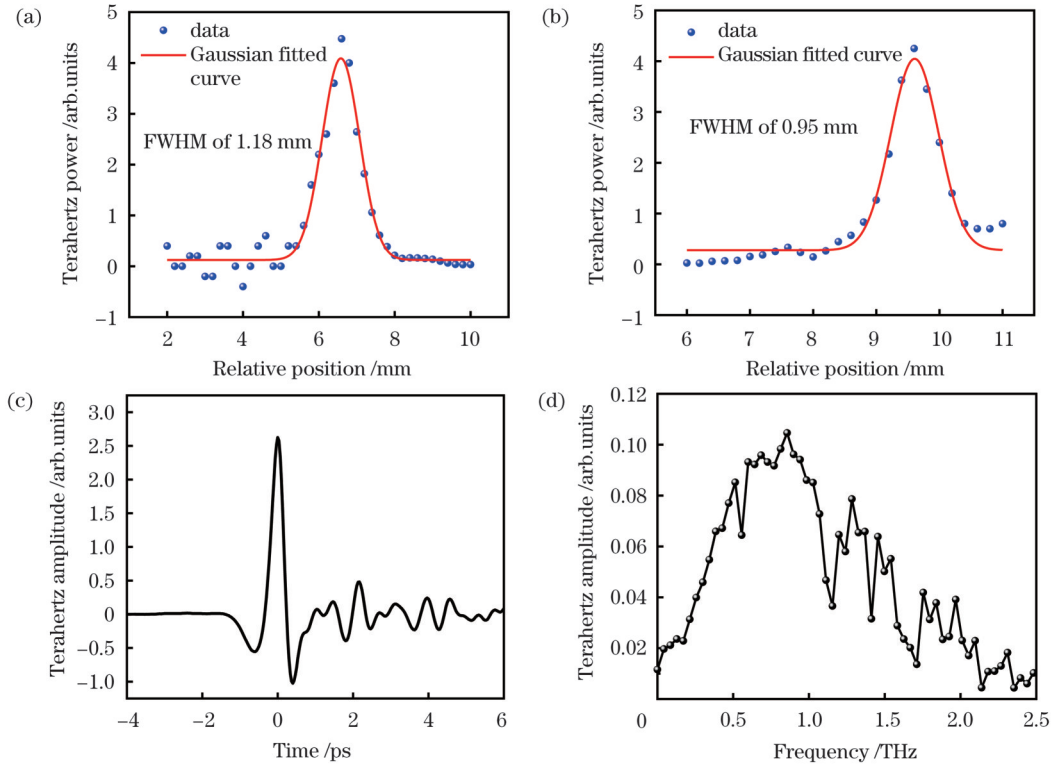


图 2 强太赫兹脉冲的表征。(a)刀片法在水平方向上的测量结果;(b)刀片法在竖直方向上的测量结果;(c)太赫兹脉冲的时域波形;(d)太赫兹脉冲的频域谱
Fig. 2 Characterization of strong terahertz pulse. (a) Measurement results of knife-edge method in horizontal direction; (b) measurement results of knife-edge method in vertical direction; (c) time-domain waveform of terahertz pulses; (d) frequency domain spectrum of terahertz pulses

3 分析与讨论

图 3(a)展示了不同太赫兹场强下 GaSe 晶体的太赫兹抽运-光探测的实验结果。可以看到,瞬态信号的强度随着太赫兹峰值电场的增加而变大。实际上,入射到 GaSe 晶体上的强太赫兹脉冲将会对其折射率进行调制。延迟的 780 nm 探测光再经过 GaSe 晶体时,将感应到双折射,平行和垂直于太赫兹偏振方向的两个偏振分量会在传播方向 z 位置处产生相位延迟 ($\Delta\phi$),其与折射率变化(Δn)的关系^[26]为

$$\Delta\phi(t) = \frac{\omega}{c} \int \Delta n(z, t) dz, \quad (2)$$

式中: ω 为探测光的角频率; c 为光速。当探测光从厚度为 d 的 GaSe 晶体中射出时,经历的相位延迟为

$$\Delta\phi = \frac{\Delta n d \omega}{c}. \quad (3)$$

平衡探测器输出的差分电压信号与探测光的两个正交分量的相位差关系^[3]为

$$\frac{\Delta V}{V_0} = \sin \Delta\phi = \sin \frac{\Delta n d \omega}{c} = \sin \frac{(n_y - n_x) d \omega}{c}, \quad (4)$$

式中: ΔV 为平衡探测器输出的电压之差; V_0 为电压之和; n_y 和 n_x 分别为太赫兹脉冲抽运后 GaSe 晶体中 y' 轴和 x' 轴方向的折射率。强太赫兹抽运导致的相位延迟 $\Delta\phi$ 很小,通常在几到几十毫弧度 (mrad) 量级^[3-4, 26-28],因此可以取 $\Delta V/V_0 \approx \Delta\phi$ 。从图 3(a)中的插图可以看到,瞬态信号与抽运太赫兹的电场包络非常接近,这表明 GaSe 的非线性响应非常快,太赫兹脉冲诱导的信号会立即响应太赫兹脉冲的变化,这是由于 GaSe 中的太赫兹波与探测光具有良好的相位匹配 (GaSe 晶体在频率 1 THz 处的折射率 $n_{\text{THz}} = 3.27$, GaSe 晶体在波长 800 nm 处的折射率 $n_{800 \text{ nm}} = 3.13$)^[10]。

我们通过提取强场太赫兹诱导的信号峰值 [图 3(b)],分析实验现象潜在的非线性行为。我们分别采用了与太赫兹电场呈正比和平方关系的函数进行拟合,但拟合曲线很难与实验数据吻合。因此我们在二阶非线性电极化率 ($\chi^{(2)}$) 和三阶非线性电极化率 ($\chi^{(3)}$) 共存的情况下进行拟合:

$$Y = aX + bX^2, \quad (5)$$

式中: a 和 b 为常数。拟合结果如图 3(b)中的实线所示,可以看到,拟合曲线与实验数据吻合得很好。与折

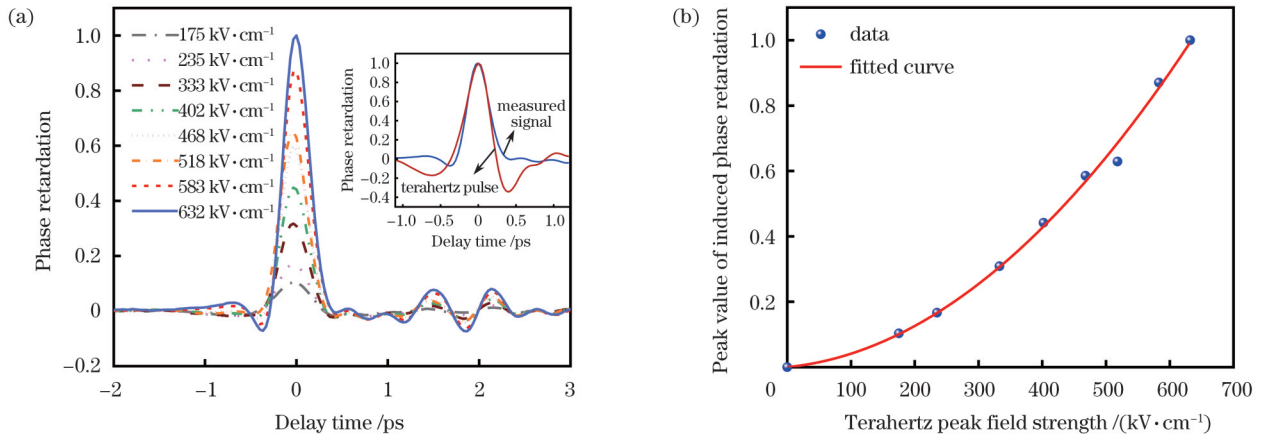


图3 归一化强太赫兹脉冲诱导的非线性光学响应。(a)抽运太赫兹脉冲在不同峰值场强下诱导的相位延迟随时间的演化,插图为 632 kV/cm 场强下测得的信号与太赫兹时域脉冲的对比;(b)诱导的相位延迟的峰值与太赫兹峰值场强的依赖关系及拟合曲线
Fig. 3 Nonlinear optical response induced by normalized strong terahertz pulse. (a) Evolution of phase retardation induced by pumped terahertz pulse over time under different peak field strengths with comparison between measured signal at field strength of 632 kV/cm and terahertz time-domain pulse shown in inset; (b) dependence of peak value of induced phase retardation on terahertz peak field strength and fitted curve

射率变化有关的二阶和三阶非线性效应分别为普克尔斯效应和克尔效应,这意味着 GaSe 晶体在强太赫兹脉冲抽运下同时出现了普克尔斯效应和克尔效应。拟合得到 $a=1.98 \times 10^{-4}$, $b=2.2 \times 10^{-6}$ 。二阶非线性过程的权重远大于三阶非线性过程的权重,这与理论也是一致的,因为材料中的高阶非线性效应比低阶非线性效应弱得多。

当综合考虑二阶和三阶非线性效应时, GaSe 晶体的折射率与太赫兹电场 (E) 的关系为

$$n(E) = n_0 + \alpha E + \beta E^2, \quad (6)$$

式中: $n(E)$ 为 GaSe 晶体的折射率; n_0 为静态折射率; α 和 β 为常数。那么折射率变化 Δn 为

$$\Delta n = \alpha E + \beta E^2. \quad (7)$$

折射率变化由普克尔斯效应(太赫兹脉冲诱导的折射率变化 $\Delta n_1 = \alpha E$)和克尔效应(太赫兹脉冲诱导的折射率变化 $\Delta n_2 = \beta E^2$)引起。接下来我们从折射率椭球方程出发,推导强太赫兹脉冲诱导的 GaSe 晶体折射率变化与电光系数和克尔系数之间的定量关系。

对于普克尔斯效应, GaSe 的一次电光系数张量为

$$\begin{pmatrix} 0 & \gamma_{12} & 0 \\ 0 & \gamma_{22} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ \gamma_{61} & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (8)$$

式中:非零张量元 $\gamma_{12} = -\gamma_{22} = \gamma_{61}$ 。

GaSe 为单轴晶体,当未施加太赫兹电场时, $n_o = n_x = n_y$, $n_e = n_z$,其中 n_o 为 o 光的折射率; n_e 为 e 光的折射率; n_x 、 n_y 、 n_z 分别为 GaSe 晶体中 x 、 y 和 z 轴方向的折射

率。折射率椭球方程为

$$\frac{x^2}{n_x^2} + \frac{y^2}{n_y^2} + \frac{z^2}{n_z^2} = 1. \quad (9)$$

假定沿晶体的 x 轴施加太赫兹电场 E , 有 $E_x = E$, $E_y = E_z = 0$, 其中 E_x 、 E_y 、 E_z 分别表示施加在晶体 x 、 y 和 z 轴方向上的太赫兹电场。折射率椭球方程变为

$$\frac{x^2}{n_x^2} + \frac{y^2}{n_y^2} + \frac{z^2}{n_z^2} + 2xy\gamma_{61}E = 1. \quad (10)$$

通过坐标变换可得

$$\left(\frac{1}{n_o^2} + \gamma_{61}E\right)x'^2 + \left(\frac{1}{n_o^2} - \gamma_{61}E\right)y'^2 + \frac{1}{n_e^2}z'^2 = 1. \quad (11)$$

再利用泰勒公式,得到新坐标系下的折射率为

$$\begin{cases} n_{x'} = n_o - \frac{1}{2}n_o^3\gamma_{61}E \\ n_{y'} = n_o + \frac{1}{2}n_o^3\gamma_{61}E \\ n_{z'} = n_e \end{cases}, \quad (12)$$

式中: $n_{x'}$ 、 $n_{y'}$ 、 $n_{z'}$ 分别为 x' 、 y' 和 z' 轴方向的折射率。因此,基于普克尔斯效应,太赫兹脉冲诱导的折射率变化为

$$\Delta n_1 = n_{y'} - n_{x'} = n_o^3\gamma_{61}E. \quad (13)$$

对于克尔效应, GaSe 的二次电光系数张量为

$$\begin{pmatrix} h_{11} & h_{12} & h_{13} & 0 & 0 & 0 \\ h_{12} & h_{11} & h_{13} & 0 & 0 & 0 \\ h_{31} & h_{31} & h_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & h_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & h_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & h_{11} - h_{12} \end{pmatrix}. \quad (14)$$

当未施加太赫兹电场时,折射率椭球方程为式(9)。

沿晶体的 x 轴施加太赫兹电场 E , 折射率椭球方程变为

$$\left(\frac{1}{n_o^2} + h_{11}E^2\right)x^2 + \left(\frac{1}{n_o^2} + h_{12}E^2\right)y^2 + \left(\frac{1}{n_e^2} + h_{31}E^2\right)z^2 = 1. \quad (15)$$

可求得新坐标系下的折射率为

$$\begin{cases} n_x = n_o - \frac{1}{2}n_o^3h_{11}E^2 \\ n_y = n_o - \frac{1}{2}n_o^3h_{12}E^2 \\ n_z = n_e - \frac{1}{2}n_e^3h_{31}E^2 \end{cases} \quad (16)$$

探测光沿 z 轴传播,其折射率变化为

$$\Delta n_2 = n_y - n_x = \frac{1}{2}n_o^3(h_{11} - h_{12})E^2 = K\lambda E^2, \quad (17)$$

式中: K 为克尔电光系数; λ 为探测光的波长。式(13)、(17)分别展示了两种非线性光学效应中折射率变化与太赫兹电场、电光系数的关系。实验中总折射率变化 Δn 应为两者之和,即 $\Delta n = \Delta n_1 + \Delta n_2$ 。

另一方面,从非线性光学理论易知,在普克尔斯效应和克尔效应中,外加的太赫兹电场诱导的折射率变化分别为

$$\Delta n_1 = \chi^{(2)}E/n_o, \quad (18)$$

$$\Delta n_2 = n_2E^2 = 3\chi^{(3)}E^2/2n_o, \quad (19)$$

式中: n_2 为非线性折射率系数。

当实验测得 ΔV 和 V_0 后,便可以得到强太赫兹脉冲诱导的相位延迟 $\Delta\phi$,从而进一步得到折射率的变化 Δn 。通过式(5)拟合太赫兹脉冲抽运下瞬态信号的峰值与电场的依赖关系,得到拟合参数 a 和 b ,再根据式(13)、(17)、(18)、(19)便可以得到亚周期强场太赫兹抽运下材料的电光系数以及非线性折射率系数。由于我们在实验中只测量了 ΔV ,而没有测量 V_0 ,因此当前无法给出这些参量具体的数值大小,但我们提供了一种太赫兹非线性光谱的分析思路,其对各种光学材料非线性参数的测量具有重要的参考价值。后续我们将利用该光谱系统对各类透明材料的非线性行为展开研究。上述分析方法具有普适性,对于非中心对称介质,如 GaSe、GaAs 和 ZnTe 等,强太赫兹电场诱导的相位移动受二阶和三阶非线性效应的共同作用。而对于中心对称介质,如硅、石英玻璃、石墨烯和液体介质,其二阶非线性响应为零,太赫兹电场诱导的相位变化主要是由三阶非线性效应(克尔效应)引起的,数据的拟合和相关参量的提取则更为直接和简便。

4 结 论

利用波前倾斜的飞秒激光抽运 LiNbO₃ 晶体,得到了单脉冲能量为 2.6 μ J、峰值强度为 632 kV/cm 的亚周期强太赫兹脉冲辐射源。为了研究各种材料在强场太赫兹脉冲抽运下的非线性响应,在此基础上搭建了强太赫兹抽运-光探测光谱系统,并利用该系统对非线

性晶体 GaSe 进行了测试研究。实验发现,强场太赫兹抽运同时导致了普克尔斯效应和克尔效应。最后给出了折射率变化与太赫兹电场之间的关系式,其为强太赫兹抽运下非线性系数的测定提供了参考。

参 考 文 献

- [1] Hafez H A, Kovalev S, Deinert J C, et al. Extremely efficient terahertz high-harmonic generation in graphene by hot Dirac fermions[J]. Nature, 2018, 561(7724): 507-511.
- [2] Cheng B, Kanda N, Ikeda T N, et al. Efficient terahertz harmonic generation with coherent acceleration of electrons in the Dirac semimetal Cd₃As₂[J]. Physical Review Letters, 2020, 124(11): 117402.
- [3] Hoffmann M C, Brandt N C, Hwang H Y, et al. Terahertz Kerr effect[J]. Applied Physics Letters, 2009, 95(23): 231105.
- [4] Zalkovskij M, Strikwerda A C, Iwaszczuk K, et al. Terahertz-induced Kerr effect in amorphous chalcogenide glasses[J]. Applied Physics Letters, 2013, 103(22): 221102.
- [5] Hafez H A, Kovalev S, Tielrooij K J, et al. Terahertz nonlinear optics of graphene: from saturable absorption to high-harmonics generation[J]. Advanced Optical Materials, 2020, 8(3): 1900771.
- [6] Turchinovich D, Hvam J M, Hoffmann M C. Self-phase modulation of a single-cycle terahertz pulse by nonlinear free-carrier response in a semiconductor[J]. Physical Review B, 2012, 85(20): 201304.
- [7] Vicario C, Shalaby M, Hauri C P. Subcycle extreme nonlinearities in GaP induced by an ultrastrong terahertz field[J]. Physical Review Letters, 2017, 118(8): 083901.
- [8] Boyd R W. Nonlinear optics[M]. San Diego: Academic Press, 2008.
- [9] Dolgaleva K, Materikina D V, Boyd R W, et al. Prediction of an extremely large nonlinear refractive index for crystals at terahertz frequencies[J]. Physical Review A, 2015, 92(2): 023809.
- [10] Hebling J, Yeh K L, Hoffmann M C, et al. Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities[J]. Journal of the Optical Society of America B, 2008, 25(7): B6-B19.
- [11] 吴晓君, 任泽君, 孔德胤, 等. 铌酸锂强场太赫兹光源及其应用[J]. 中国激光, 2022, 49(19): 1914001.
- [12] 才家华, 张保龙, 耿春艳, 等. 铌酸锂强场太赫兹非线性光谱系统[J]. 中国激光, 2023, 50(17): 1714012.
- [13] Cai J H, Zhang B L, Geng C Y, et al. Lithium niobate strong field terahertz nonlinear spectroscopy[J]. Chinese Journal of Lasers, 2023, 50(17): 1714012.
- [14] Hebling J. Derivation of the pulse front tilt caused by angular dispersion[J]. Optical and Quantum Electronics, 1996, 28(12): 1759-1763.
- [15] Hebling J, Almasi G, Kozma I, et al. Velocity matching by pulse front tilting for large area THz-pulse generation[J]. Optics Express, 2002, 10(21): 1161-1166.
- [16] 吴晓君, 郭丰玮, 马景龙, 等. 基于倾斜波前技术的高能强场太赫兹辐射脉冲源[J]. 中国激光, 2019, 46(6): 0614008.
- [17] Wu X J, Guo F W, Ma J L, et al. High-energy strong-field terahertz pulses based on tilted-pulse-front technique[J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(6): 0614008.
- [18] Allakhverdiev K R, Yetis M Ö, Özbek S, et al. Effective nonlinear GaSe crystal. Optical properties and applications[J]. Laser Physics, 2009, 19(5): 1092-1104.
- [19] Li G F, Huang R J, Huang J G, et al. Impact of sulfur doping on broadband terahertz emission in gallium selenide single crystals via optical rectification[J]. Applied Physics Express, 2021, 14(7): 072004.

- [18] Hebling J, Stepanov A G, Almási G, et al. Tunable THz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts[J]. *Applied Physics B*, 2004, 78(5): 593-599.
- [19] Huber R, Brodschelm A, Tauser F, et al. Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 THz[J]. *Applied Physics Letters*, 2000, 76(22): 3191-3193.
- [20] 聂佳琪, 赵欢, 张岩. 基于硒化镓晶体差频效应的宽谱太赫兹系统[J]. *激光与光电子学进展*, 2020, 57(7): 073001.
Nie J Q, Zhao H, Zhang Y. Broadband terahertz spectroscopy system based on difference frequency generation in GaSe crystal[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2020, 57(7): 073001.
- [21] 李强爽, 孙长明, 范书振, 等. 整形超短激光脉冲与硒化镓晶体光整流效应的可调谐宽带太赫兹波产生[J]. *光学学报*, 2023, 43(5): 0519001.
Li Q S, Sun C M, Fan S Z, et al. Tunable broadband terahertz wave generation based on optical rectification effect of shaped ultrashort laser pulses interacting with GaSe crystal[J]. *Acta Optica Sinica*, 2023, 43(5): 0519001.
- [22] Liu K, Xu J Z, Zhang X C. GaSe crystals for broadband terahertz wave detection[J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 85(6): 863-865.
- [23] Kübler C, Huber R, Tübel S, et al. Ultrabroadband detection of multi-terahertz field transients with GaSe electro-optic sensors: approaching the near infrared[J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 85(16): 3360-3362.
- [24] Wu X J, Ma J L, Zhang B L, et al. Highly efficient generation of 0.2 mJ terahertz pulses in lithium niobate at room temperature with sub-50 fs chirped Ti:sapphire laser pulses[J]. *Optics Express*, 2018, 26(6): 7107-7116.
- [25] Blanchard F, Razzari L, Bandulet H C, et al. Generation of 1.5 μ J single-cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal[J]. *Optics Express*, 2007, 15(20): 13212-13220.
- [26] Zhao H, Tan Y, Zhang L L, et al. Ultrafast hydrogen bond dynamics of liquid water revealed by terahertz-induced transient birefringence[J]. *Light: Science & Applications*, 2020, 9: 136.
- [27] Cornet M, Deger J, Abraham E, et al. Terahertz Kerr effect in gallium phosphide crystal[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2014, 31(7): 1648-1652.
- [28] Sajadi M, Wolf M, Kampfrath T. Terahertz-field-induced optical birefringence in common window and substrate materials[J]. *Optics Express*, 2015, 23(22): 28985-28992.

Intense Terahertz Pulse Generation and Nonlinear Effect of GaSe Crystal

Suo Peng¹, Wang Chen¹, Li Gaofang², Sun Kaiwen¹, Zhang Wenjie¹, Lin Xian¹, Huang Zhiming³, Ma Guohong^{1*}

¹*Department of Physics, Shanghai University, Shanghai 200444, China;*

²*School of Electronic & Information Engineering, Shanghai University of Electric Power, Shanghai 200090, China;*

³*State Key Laboratory of Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China*

Abstract

Objective The study of high-order nonlinear behavior, prompted by single-cycle or subcycle strong terahertz pulses, has been scarce, primarily due to the limitations of highly stable and high-intensity terahertz radiation sources. The strong terahertz field-matter interaction leads to new avenues for exploring and understanding various novel nonlinear phenomena. The employment of a femtosecond laser to pump a lithium niobate (LiNbO₃) crystal has been considered as a major strategy for generating strong terahertz radiation. The strong terahertz pulse acquired by this technique can coherently detect and manipulate the optical properties of materials on an ultrafast timescale and can play a crucial role in discovering new phenomena and revealing new mechanisms. In this study, to explore the nonlinear effects of materials under strong terahertz pulse irradiation, a strong terahertz pump-optical probe spectroscopy system is developed by utilizing the tilted wavefront technique based on a lithium niobate crystal. Specifically, the highest terahertz output energy of 2.6 μ J and a focused terahertz peak electric field strength of 632 kV/cm are realized. Meanwhile, the nonlinear crystal gallium selenide (GaSe) is examined with this system, and we demonstrate that the strong change in the terahertz pulse-induced refractive index of GaSe is due to Pockels and Kerr effects.

Methods A strong terahertz pump-optical probe spectroscopy system is established (Fig. 1). This system operates on a Ti:sapphire laser amplifier that can deliver laser pulses with a single-pulse energy of 2 mJ, a pulse duration of 120 fs, and a repetition rate of 1 kHz. A small portion of the femtosecond laser is divided by a beam splitter to sample the birefringence signal of the material induced by the terahertz pulse, whereas the residual 90% of the laser energy is used to pump the lithium niobate crystal to generate a strong terahertz pulse. A diffraction grating of 1800 line/mm is used to tilt the wavefront of the pump laser. A half-wave plate behind the grating changes the polarization of the pump laser from horizontal to vertical, making it parallel to the optical axis of the lithium niobate crystal. A 4f-lens geometry is used to image the pump spot with a tilted pulse front onto lithium niobate. The polarization distribution of terahertz pulses delivered from the lithium niobate is vertical. Subsequently, strong terahertz pulses are focused on the surface of the sample using a series of off-axis parabolic mirrors. A weak 780-nm probe beam overlaps with the terahertz pumping beam on the sample, and it is transmitted through the sample. An assembly of a quarter-wave plate, a Wollaston prism, and a balanced detector is used to sample changes in the refractive index of the material. A pair of wire-grid polarizers is used to tune the electric field intensity of terahertz pulses.

Results and Discussions The transient optical responses of the GaSe crystal are measured under different terahertz peak electric

fields (Fig. 3). The transient signal intensity increases as the terahertz peak electric field strength increases. In essence, when strong terahertz pulses are incident on the GaSe crystals, the refractive index is modulated. Subsequently, the delayed probe light experiences birefringence induced by intense terahertz pulses as it passes through the GaSe crystal, and the two polarization components parallel and perpendicular to the terahertz polarization direction produce a phase retardation in the propagation direction. The maximum transient signals under different terahertz electric fields are extracted to analyze the potential nonlinear behavior of the experimental phenomena. A function that considers the coexistence of $\chi^{(2)}$ and $\chi^{(3)}$ nonlinear processes is used to fit the extracted maximum. The fitted curve can reproduce the experimental data in a better manner, indicating that the strong terahertz pulses simultaneously cause Pockels and Kerr effects in the GaSe crystal. Finally, we present the relationship between the change in the refractive index, induced by strong terahertz pulses, and electro-optic coefficient, along with the nonlinear refractive index.

Conclusions A strong terahertz pulse with a single pulse energy of 2.6 μJ and peak electric field strength of 632 kV/cm is generated by employing the tilted wavefront technique based on lithium niobate crystals. The nonlinear optical response of a gallium selenide crystal is examined using a terahertz pump-optical probe system. The optical birefringence induced by sub-cycle terahertz pulses is observed, and the analysis suggests that the changes in polarization are related to Pockels and Kerr effects. This study provides a pathway for the analysis of the nonlinear effect in a medium under strong terahertz pumping and offers a reference for the determination of the electro-optic coefficient and nonlinear refractive index of materials.

Key words materials; lithium niobate; tilted wavefront; strong terahertz pulse; nonlinear effect