

# 砷化镓晶体在连续 CO<sub>2</sub> 激光作用下的 三阶非线性系数

李再光 程祖海 张永方 李同宁  
(华中工学院激光研究所)

## 提 要

用千瓦级连续 CO<sub>2</sub> 激光作光源, 得到复合型砷化镓材料的三阶非线性系数为  $8.3 \times 10^{-7}$  esu, 同时根据这种材料的杂质能级对其三阶非线性系数进行计算, 所得结果与实验相符。

## 一、引 言

采用相位共轭谐振腔来改善激光器的光学质量, 近年来已引起人们的重视。它需要用相位共轭镜(PCM)。因此, 找出高共轭反射系数  $R_0$  的光学材料作为 PCM, 是相位共轭腔走向实用化时首先要解决的问题。

半导体的非线性机理有多种<sup>[1]</sup>。主要为束缚电子的非简谐运动, 载流子的非线性运动, 以及由于能级跃迁所产生的非线性。人们可以采用不同的半导体材料和在半导体材料中掺杂来获得不同的三阶非线性系数  $\chi^{(3)}$  (以下简称  $\chi^{(3)}$ )。几种常见的半导体, 如 InAs、InSb、GaAs、Ge、Si 和 HgCdTe 等的  $\chi^{(3)}$  已有许多研究。其中 GaAs 在  $10.6 \mu\text{m}$  激光作用下, 由导带非抛物型产生的  $\chi^{(3)}$  为  $8 \times 10^{-11}$  esu, 由束缚电子的非简谐运动产生的  $\chi^{(3)}$  为  $1.2 \times 10^{-11}$  esu, 由价带中能级跃迁产生的  $\chi^{(3)}$  为  $4 \times 10^{-11}$  esu。由于 GaAs 的禁带宽度为 1.43 eV, 相当于  $0.8 \mu\text{m}$  光子的能量,  $10.6 \mu\text{m}$  光子的能量不足以产生由价带到导带的跃迁。因此在  $10.6 \mu\text{m}$  光子作用下, GaAs 材料的三阶非线性效应不能用价带到导带之间的能级跃迁来解释。禁带中杂质与杂质、杂质与价带之间的能级差可小于  $10.6 \mu\text{m}$  光子的能量。选用不同的杂质, 在  $10.6 \mu\text{m}$  激光作用下, 可以产生不同的三阶非线性效应, 只不过这方面的报道还不多见。我们采用复合型 GaAs 材料作简并四波混频中的非线性介质, 实验得到在  $10.6 \mu\text{m}$  激光作用下的  $\chi^{(3)}$  为  $8.3 \times 10^{-7}$  esu, 与理论计算的  $3.4 \times 10^{-7}$  esu 相近。

## 二、简并四波混频实验方案的选择

简并四波混频可以自动满足相位匹配条件。利用简并四波混频研究复合型 GaAs 材料的  $\chi^{(3)}$ , 可以避免晶体的晶轴取向和折射率随温度变化等给实验带来的困难。实验中, 选用一片一侧镀增透膜, 另一侧镀反射率为 85% 增反膜的复合型 GaAs 镜片, 兼非线性介质和

全反射镜于一体,构成图 1 所示转换增益较高的一种简并四波混频相共轭镜的方案。

由于增反膜直接镀在 GaAs 镜片的一侧,不需要另外的全反射镜。这样,不仅可以避免非线性材料与全反射镜之间多次反射产生寄生信号激励的可能性,而且有利于提高共轭反射率  $R_0$ 。为了满足复合型 GaAs 材料三阶非线性效应阈值泵浦功率的要求,在实验方案中,还采用了图 2 所示的将泵浦激励和信号激励分别通过  $M_4$  和  $M_2$ ,都聚焦到非线性晶体上的方案。但探测光的光斑直径较泵浦光的光斑直径为大,使得在调节相位共轭镜  $M_5$  和泵浦光聚焦透镜  $M_4$  的距离  $D$  时,泵浦光始终处于探测光的包围之中。由于  $M_5$  和  $M_4$  平行同轴地安装在同一光具座上,  $M_4$  位置的变化,只是  $D$  的大小发生变化,泵浦光和探测光的相对几何角度仍然保持不变。

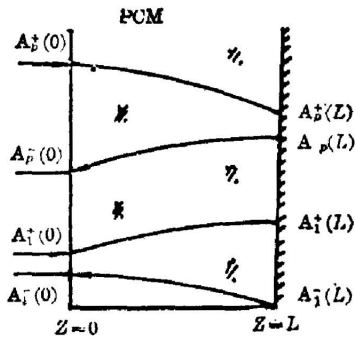


图 1 复合型 GaAs 中简并四波混频原理图

Fig. 1 DFWM in recombination-type gallium arsenide

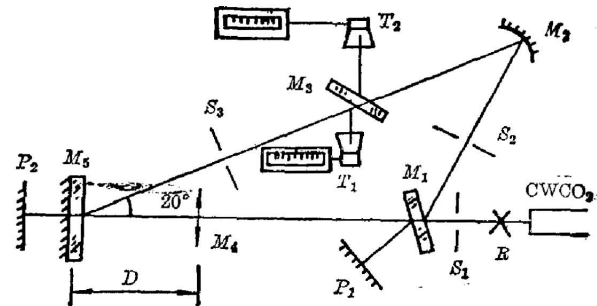


图 2 千瓦级连续 CO<sub>2</sub> 激光简并四波混频相位共轭实验方案布置图

Fig. 2 Schematic diagram of DFWM in recombination-type gallium arsenide using a CW CO<sub>2</sub> laser

### 三、数据处理及误差分析

#### 1. 实验数据的数学处理

如图 2 所示,连续 CO<sub>2</sub> 激光器多模输出光束,经开槽 10% 的斩光器  $R$  和分束镜  $M_1$  后,约 85% 的激光输出功率作为 PCM 的泵浦光,15% 作为探测光。泵浦光和探测光分别经  $f=100\text{ mm}$  和  $f=1000\text{ mm}$  的  $M_4$  和  $M_2$  聚焦到待测复合 GaAs 非线性材料  $M_5$  上。在探测光路中,置入  $T=42\%$  的分束镜  $M_3$ ,使共轭光和探测光分别部分地反射到功率计  $T_1$  和  $T_2$  上,以测量其功率值。 $S_1$ 、 $S_2$ 、 $S_3$  为挡光光阑,  $P_1$ 、 $P_2$  为挡光耐火砖。改变  $M_4$  的位置,可以得到共轭光功率  $P_0$  和共轭反射率  $R_0$  与泵浦光功率密度  $I_p$  的关系。

如图 3 所示,随着  $M_4$  的位置变化,非线性晶体中泵浦光和探测光相互作用区的大小也有所变

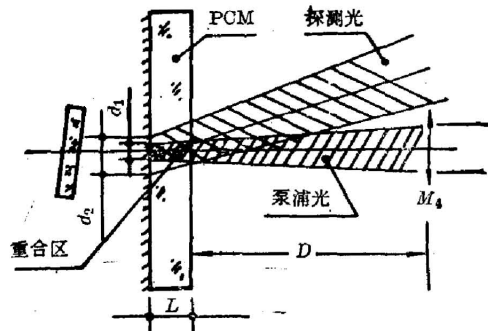


图 3 复合型 GaAs 材料 PCM 中,泵浦光与探测光相互作用示意图

Fig. 3 Region of interaction between pump beam and probe beam in recombination-type gallium arsenide PCM

化。我们用有效探测光反映这种变化。定义有效探测光为:

$$P_{\text{有效}} = P_{\text{探}} \cdot \frac{\text{重合区截面积}}{\text{探测区截面积}} = P_{\text{探}} \frac{d_1^2}{d_2^2} \quad (1)$$

在图 1 所示的四波混频方案中, 非线性材料的共轭反射率  $R_c$  为:

$$R_c \equiv G_c = \frac{A_1^2 - (0)/C_1 - (0)}{A_1^2 + (0)/C_1 + (0)} = \frac{A_1^2 - (0)}{A_1^2 + (0)} = \frac{P_c}{P_{\text{有效}}} \quad (2)$$

考虑到分束镜  $M_3$  透过率  $T$  的作用, 功率计  $T_1$  和  $T_2$  所测量的分别为共轭光和探测光的部分功率值。经过推导, 非线性材料的共轭反射率  $R_c$  为:

$$R_c = \frac{P_{T_1} \cdot d_2^2}{P_{T_2} \cdot T_3 \cdot d_1^2} \quad (3)$$

式中  $P_{T_1}$  和  $P_{T_2}$  分别为  $T_1$  和  $T_2$  的实验读数,  $d_1$  为泵浦光在非线性晶体中的光斑直径,  $d_2$  为探测光斑直径,  $T_3$  为  $M_3$  的透过率。

根据图 2 简并四波混频装置的实验测量数据, 利用 (3) 式计算得到的复合 GaAs 材料的共轭反射率  $R_c$  如表 1 和图 4 所示。

表 1 复合型砷化镓材料简并四波混频实验数据及其计算结果

Table 1 Experimental data and calculated results of DFWM in recombination-type gallium arsenide

$D(\text{mm})$	$d_1(\text{mm})$	$d_2(\text{mm})$	$I_p(\text{W}/\text{cm}^2)$	$P_{T_1}(\text{W})$	$P_{T_2}(\text{W})$	$R_c(\%)$
85	4.2	8	$1.23 \times 10^4$	0.14	12.6	9.6
83	4.6	8	$0.81 \times 10^4$	0.12	13.8	7.5
82	4.8	8	$0.71 \times 10^4$	0.125	13.2	6.3
81	5.0	8	$0.66 \times 10^4$	0.135	13.8	6.0
80	5.2	8	$0.635 \times 10^4$	0.13	13.8	5.4
70	7.2	8	$0.32 \times 10^4$	0.12	13.2	2.7

从图 4 中可以看出, 当  $I_p > 1.23 \times 10^4 \text{ W}/\text{cm}^2$  时, 复合 GaAs 材料在  $10.6 \mu\text{m}$  连续  $\text{CO}_2$  激光作用下的共轭反射率  $R_c$  值逐渐趋于饱和, 利用 (4) 式<sup>[2,3]</sup>和我们实验得到的共轭反射率

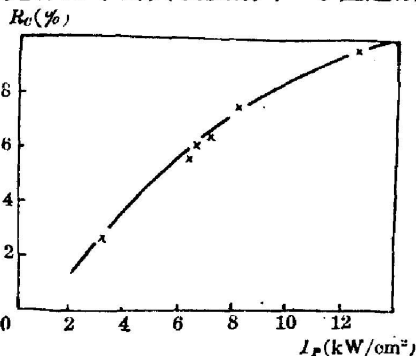


图 4 复合型 GaAs 中共轭反射率  $R_c$  与泵浦光功率密度  $I_p$  的关系

Fig. 4 Conjugate reflectivity  $R_c$  of recombination-type GaAs versus pump intensity

$R_c$  值, 可以计算出复合 GaAs 材料的  $\chi^{(3)}$ :

$$R_c = \frac{1024\pi^4 \omega^2 I_1 I_2 |\chi^{(3)}|^2 L^2}{n^4 c^4} \quad (4)$$

式中  $\omega$  为激光的角频率,  $I_1$  和  $I_2$  为方向相反的泵浦功率密度,  $I_2 = 0.85 I_1$ ,  $n$  为复合 GaAs 的折射率,  $n = 3.37$ ,  $c$  为光速,  $L$  为有效作用长度, 取  $L = 0.55 \text{ cm}$ 。当  $R_c = 9.6\%$  时, 计算所得的复合型 GaAs 材料的  $\chi^{(3)}$  为  $8.3 \times 10^{-7} \text{ esu}$ , 比前述三种机理产生的三阶非线性系数提高了两个数量级。可以认为, 这样高的三阶非线性系数, 归因于复合 GaAs 材料禁带中杂质与价带或杂质与杂质之间的能级跃迁。

## 2. 实验结果的误差分析

考虑到(3)式, GaAs 材料三阶非线性系数  $\chi^{(3)}$  的计算式(4)可表示为:

$$|\chi^{(3)}| = \sqrt{\frac{P_{T_1} \cdot d_2^2}{P_{T_1} \cdot T_3 \cdot d_1^2} \cdot \frac{n^4 c^4}{1024 \pi^4 \omega^2 I_1 I_2 L^2}} \quad (5)$$

在假定  $P_{T_1}$ 、 $P_{T_2}$ 、 $d_1$ 、 $d_2$ 、 $T_3$ 、 $I_1$ 、 $I_2$  和  $L$  都是在测量无关的量的条件下, 依据无关观测量  $\chi_1, \chi_2, \chi_3, \dots, \chi_N$  之积  $y = \prod \chi_i$  的相对误差传播公式<sup>[4]</sup>:

$$\left(\frac{\sigma(y)}{\langle y \rangle}\right)^2 \approx \sum_i \left(\frac{\sigma(\chi_i)}{\langle \chi_i \rangle}\right)^2 \quad (6)$$

实验得到的复合型 GaAs 材料  $|\chi^{(3)}|$  的测量误差为:

$$\begin{aligned} \left(\frac{\sigma(|\chi^{(3)}|)}{\langle |\chi^{(3)}| \rangle}\right)^2 &= \left(\frac{\sigma(P_{T_1})}{\langle P_{T_1} \rangle}\right)^2 + \left(\frac{\sigma(P_{T_2})}{\langle P_{T_2} \rangle}\right)^2 + \left(\frac{\sigma(d_1)}{\langle d_1 \rangle}\right)^2 + \left(\frac{\sigma(d_2)}{\langle d_2 \rangle}\right)^2 \\ &+ \left(\frac{\sigma(T_3)}{\langle T_3 \rangle}\right)^2 + \left(\frac{\sigma(I_1)}{\langle I_1 \rangle}\right)^2 + \left(\frac{\sigma(I_2)}{\langle I_2 \rangle}\right)^2 + \left(\frac{\sigma(L)}{\langle L \rangle}\right)^2 \end{aligned} \quad (7)$$

在实验条件下, 根据有关测量仪器的本身测量精度和测量方法, 我们取共轭光功率  $P_{T_1}$  和信号光功率  $P_{T_2}$  的测量相对误差为 5%, 泵浦入射功率密度  $I_1$  及其反射光功率密度  $I_2$  的测量相对误差为 10%, 分束镜  $M_3$  的透过率  $T_3$  的测量相对误差为 1%, 实验复合 GaAs 镜片的有效作用长度  $L$  的测量相对误差为 1%。泵浦入射和信号激励光的焦点光斑直径  $d_1$  和  $d_2$  的测量相对误差较大, 它们是根据焦点光斑在有机玻璃上的烧孔直径所测量得到的。由于强光对有机玻璃的气化作用, 一般在有机玻璃上的烧孔直径将大于光束实际光斑的尺寸,  $d_1$  和  $d_2$  的测量相对误差估计可达 30% 以上。根据以上各测量量相对误差的大小, 利用(7)式计算得到的复合 GaAs 晶体的  $|\chi^{(3)}|$  的测量相对误差约为 45% 左右。

## 四、理论计算与实验结果的比较

在上述简并四波混频实验中, 我们选用了复合型 GaAs 作为相位共轭镜 PCM。在制备复合型 GaAs 晶体时, 为了得到  $\rho = 10^7 \sim 10^9 \Omega \cdot \text{cm}$  的本征电阻率, 掺入了深受主铟和深施主氧<sup>[5]</sup>, 从文献[6]可知受主铟和施主氧之间的能级差为 0.07 eV, 相当于 17.7  $\mu\text{m}$  波长, 受主铟与价带之间的最小能差为 0.096 eV, 相当于 12.9  $\mu\text{m}$  波长。在 10.6  $\mu\text{m}$  激光作用下, 将优先产生受主铟与价带之间的能级跃迁。

我们用红外分光光度计测量复合型 GaAs 镜片的透过率曲线时, 看到了波长为 12.9  $\mu\text{m}$  和 17.7  $\mu\text{m}$  处的两个吸收峰, 如图 5 所示。这一事实表明, 复合型 GaAs 材料中杂质与杂质, 杂质与价带之间, 可以吸收 10.6  $\mu\text{m}$  的 CO<sub>2</sub> 激光而产生能级跃迁, 导致相当高的三阶非线性效应。在我们实验中使用的多模 CO<sub>2</sub> 激光束, 其横向模式分布高达十数阶, 因而其远场光斑横向分布与单色平面波的均匀横向强度分布十

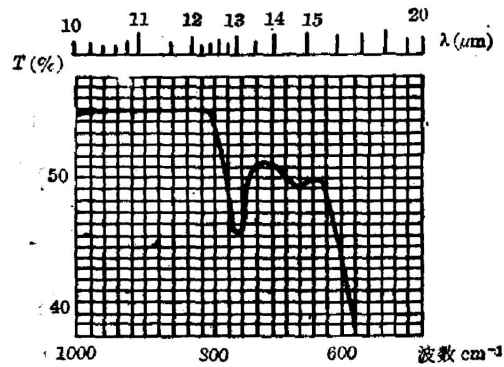


图 5 复合型 GaAs 材料对不同波长的透过率曲线

Fig. 5 Transmittance of recombination-type gallium arsenide versus wavelength

分接近。为此,在多模连续 CO<sub>2</sub> 激光作用下,复合型 GaAs 材料禁带中杂质与杂质、杂质与价带之间的能级跃迁对  $\chi^{(3)}$  的贡献,可以近似地用单色平面波理论的公式来计算<sup>[1]</sup>。

$$\chi^{(3)} = -\frac{\eta \alpha n c e^2 \tau}{8 \pi \hbar m_{eh}^* \omega^3} \left[ \frac{\omega^2}{\omega_g^2 - \omega^2} \right], \quad (8)$$

式中  $\eta$  为每吸收一个光子所产生的电子-空穴对,取  $\eta=1$ ,  $\alpha$  为 GaAs 的吸收系数,取  $\alpha=0.02 \text{ cm}^{-1}$ ,  $n$  为 GaAs 的折射率,  $n=3.37$ ,  $c$  为光速,  $e$  为电子电荷,  $m_{eh}^*$  为电子-空穴对等效质量,取  $m_{eh}^*=0.12$  电子质量,  $\omega$  为激光角频率,  $\omega_g$  为与能差相应的角频率,取能差为  $0.096 \text{ eV}$ , 则  $\hbar\omega_g = E_g = 0.096 \text{ eV}$ ,  $\tau$  为载流子的总寿命,且

$$\tau = \frac{\tau_D \tau_R}{(\tau_D + \tau_R)} = 5.4 \times 10^{-9} \text{ esu},$$

$\tau_D$  为双极扩散时间常数,  $\tau_R$  为等离子体区电子-空穴对复合时间常数。

经过计算,得到复合型 GaAs 材料在连续 CO<sub>2</sub> 激光作用下的  $\chi^{(3)}$  为  $3.4 \times 10^{-7} \text{ esu}$ , 与实验得到的  $8.3 \times 10^{-7} \text{ esu}$  结果相近。

本文的实验是在美国俄亥俄州立大学徐雄教授建议下进行的,在此谨表感谢。

### 参 考 文 献

- [1] R. K. Jain; *Opt. Engineering*, 1982, **21**, No. 2 (Mar), 199.
- [2] A. Yariv, D. M. Paper; *Opt. Lett.*, 1977, **1**, No. 1 (Jan), 6.
- [3] R. W. Hellwarth; *J. Opt. Soc. Am.*, 1977, **67**, No. 1 (Jan), 1.
- [4] 李惕倍;《实验的数学处理》, (科学出版社, 1980), 104.
- [5] 李光华, 张国利;《激光》, 1982, **19**, No. 3 (Mar), 147.
- [6] S. M. Sze, J. C. Irriv; *Solid State Elect.*, 1968, **11**, No. 6 (Jun), 599.

## The third-order nonlinear susceptibility of gallium arsenide under irradiation of CW CO<sub>2</sub> laser

LI ZAIGUANG CHENG ZUHAI ZHANG YONGFANG AND LI TONGNIN  
(Laser Institute, Huazhong University of Science and Technology)

(Received 10 July 1984; revised 26 March 1985)

### Abstract

The third-order susceptibility of recombination-type semiinsulating gallium arsenide was measured to be  $8.3 \times 10^{-7} \text{ esu}$  with a multi-kW CW CO<sub>2</sub> laser. The value is in good agreement with the result calculated from the impurity energy levels of this material.