

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

李强爽^{1,2}, 孙长明^{1,2}, 范书振^{3,4}, 杜海伟^{1,2*}

¹南昌航空大学测试与光电工程学院, 江西 南昌 330063;

²南昌航空大学无损检测技术教育部重点实验室, 江西 南昌 330063;

³山东大学光学高等研究中心, 山东 青岛 266237;

⁴山东大学激光与红外系统教育部重点实验室, 山东 青岛 266237

摘要 从非线性光学基本原理出发研究了整形超短激光脉冲与硒化镓晶体光整流效应产生的可调谐宽带太赫兹辐射, 并采用数值计算对上述过程进行了仿真研究, 探索了整形激光脉冲参数对太赫兹辐射的影响。研究发现, 利用 4F 整形系统调节激光频谱分量获得的整形超短激光脉冲与硒化镓晶体的光整流效应可以产生频谱可调的宽带太赫兹辐射, 并且可以使太赫兹脉冲的中心频率由高频部分向低频部分调制, 同时带宽也会发生一定的变化。

关键词 非线性光学; 太赫兹; 硒化镓晶体; 光整流; 整形激光脉冲; 可调谐

中图分类号 O437.1

文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS221666

1 引言

太赫兹波是指频率在 0.1~10.0 THz 范围内的电磁波, 其波长范围为 30~3000 μm 。在整个电磁波谱上, 太赫兹波段位于电子学波段与光学波段中间, 因此又被称为太赫兹间隙^[1]。太赫兹波因其波段特殊而有一些特殊的性质, 如光子的低能性、高穿透性和瞬态性, 以及宽带性等^[2-3]。随着研究的发展和技术的成熟, 太赫兹波近年来在材料科学、生物医学、成像和通信等方面都显现出了良好的应用前景^[4-7]。宽带太赫兹辐射源是一种重要的太赫兹辐射源, 是太赫兹光谱技术必不可少的基础。因此, 研究宽带太赫兹辐射源具有很重大的意义。目前常用的基于超短激光脉冲产生宽带太赫兹波辐射的方法有光电导天线、光整流效应和激光等离子体作用等^[1]。

光整流效应是产生宽带太赫兹辐射的重要手段之一^[1]。该方法基于非线性光学基本理论基础, 核心为非线性晶体(或其他非线性材料)。将脉冲宽度在飞秒量级的超短激光脉冲作为泵浦源与非线性晶体相互作用, 激光脉冲中的各频率分量相互之间发生差频, 形成一个低频振荡的电极化场, 进而向外辐射电磁脉冲。经过傅里叶变换, 该电磁辐射的频率位于太赫兹波段内。光整流中所用的非线性晶体应在泵浦光和很宽的

太赫兹波段上有较高的透过率, 同时满足相位匹配条件。常用的晶体有碲化锌(ZnTe)^[8]、硒化镓(GaSe)^[9]、磷化镓(GaP)^[10]、铌酸锂(LiNbO₃)^[11]、砷化镓(GaAs)^[12]和有机晶体(DAST)^[13]等。其中, GaSe 晶体因具有较大的双折射系数和较高的透过率, 成为了实现超宽带太赫兹(0.1~30.0 THz)输出比较理想的晶体。2000年, Huber等^[14]利用 GaSe 薄片首次实现了 0.1~41.0 THz 的超宽带太赫兹输出, 验证了基于 GaSe 晶体产生宽带太赫兹辐射的可行性。改变激光脉冲参数(如波形)以控制该过程产生的太赫兹辐射, 则可能实现太赫兹辐射在超宽带范围内的可调谐输出。

GaSe 晶体为负单轴晶体, 结构为六角层状分布, 光学损伤阈值高。该晶体无需切割与抛光, 只需简单地沿生长方向解理即可得到高质量的光学平面。GaSe 晶体透光范围较宽, 在透光范围内的吸收系数小, 同时又有较高的二阶非线性系数($d_{22}=54 \text{ pm/V}$)^[15-16]。因此, 该晶体在宽带太赫兹辐射的产生与探测上有较好的应用。本文主要研究了由 4F 整形系统得到的整形超短激光脉冲与 GaSe 晶体的光整流作用产生的宽带太赫兹辐射, 并基于数值计算探讨了整形激光脉冲参数对太赫兹脉冲的影响, 获得了整形激光脉冲与太赫兹脉冲频谱之间的定量关系。

收稿日期: 2022-08-31; 修回日期: 2022-10-02; 录用日期: 2022-10-17; 网络首发日期: 2022-11-04

基金项目: 国家自然科学基金(12064028)、南昌航空大学无损检测技术教育部重点实验室开放基金(EW202108218)

通信作者: *haiweidu@nchu.edu.cn

2 理论模型

2.1 整形超短激光脉冲

飞秒激光脉冲的脉冲宽度极短、脉冲强度极高,在非线形光学相关研究领域中表现出了优越的性能,从而在基础研究和应用研究中得到了广泛应用。飞秒激光脉冲整形技术是一项重要的技术,能够通过改变激光脉冲的波形和频谱来控制其与物质的相互作用过程。飞秒激光整形技术利用光栅(棱镜等色散元件)把激光脉冲在空间按照频率分量不同进行展宽,并在空间上对超短激光脉冲各频谱分量的振幅、相位和偏振进行调制,改变了激光脉冲的频域分布,从而在时域上获得了各种不同的脉冲包络。该技术能够改变、控制激光包络,从而控制激光脉冲与物质的相互作用过程,目前已被广泛应用于分子动力学、非线性光谱学、飞秒化学、高速光通信、生物医学成像和量子运算等诸多领域中^[17-18]。

目前,飞秒激光脉冲整形技术主要利用 4F 系统将激光脉冲由时域变换到频域,并在频域对各频率分量进行调制,改变频谱分布和激光脉冲时域包络从而实现激光脉冲的整形。4F 系统由一对相同的光栅、一对相同的柱透镜和放置在中间位置的空间光调制器组成,5 个元件相邻之间的距离都为透镜的焦距 F ,这也是 4F 系统名称的由来,其中柱透镜也可以用凹面镜代替^[19]。利用放置在透镜焦平面处的空间光调制器对空间上横向分布的不同频率的光进行独立调制,即改变各频率分量的相位、振幅和偏振(可以改变一个参数,也可以同时改变几个参数),这些光经光栅压缩后出射,实现频域到时域的转换,从而实现激光脉冲的整形^[20]。

空间光调制器对空间分辨率有较高的要求,对于不同的脉冲整形需求,需要制作不同的调制器,故成本较高。可编程调制器的出现使得激光脉冲整形变得较为便捷。通过对可编程调制器的控制可以实现不同的脉冲整形模式并能不同模式间方便地切换。较为典型的有液晶空间光调制器、硅基液晶调制器和声光空间光调制器^[20]等。然而,对于高峰值功率的激光脉冲,其可能打坏电光材料从而损坏调制器,因此难以用上述调制器获得高峰值功率的整形激光脉冲^[20]。

在 4F 系统中直接用挡板从边缘处挡住一部分激光光斑(一部分激光频率分量),从而改变激光脉冲的频域分布,能够使激光脉冲时域波形发生相应变化。中心频率为 ω_0 、中心波长为 $\lambda = 800 \text{ nm}$ 和脉冲宽度为 50 fs 的高斯型超短激光脉冲的时域与频域的表达式为

$$E(t) = \frac{1}{2} \left[E_0 \exp\left(-\frac{t^2}{\tau^2}\right) \exp(i\omega_0 t) + \text{c. c.} \right], \quad (1)$$

$$E(\omega) = \frac{E_0 \tau}{2\sqrt{\pi}} \exp\left[-\frac{\tau^2(\omega - \omega_0)^2}{4}\right], \quad (2)$$

式中: t 为时间; ω 为激光频率; E_0 是激光振幅; $\tau = T_0 / (2\sqrt{\ln 2})$, 其中 T_0 为激光脉冲的半峰全宽。在 4F 系统中,从边缘处逐步移动不透光挡板把波长大于截止波长 λ_1 的部分挡住,即将该部分激光频率分量置零,此时脉冲波形也会发生相应变化。图 1(a) 是超短激光脉冲和整形后激光脉冲的时域包络波形图。图 1(b) 是选取图 1(a) 中一部分 ($-60 \sim 0 \text{ fs}$, 注意两种曲线幅值的变化不同) 的时域波形图。图 1(c) 是整形前后的频域波形图 ($\lambda_1 = 825 \text{ nm}$)。由图 1(c) 可以明显看到,在将超短激光脉冲波长大于 λ_1 的部分置零后,图 1(a) 中整形前后时域脉冲包络发生了明显变化。这种脉冲整形方式的优点和缺点非常明显。优点是简单易行、成本低廉和可对高峰值功率的激光脉冲进行整形。挡板可以选取铁板之类的材料,从而使得高峰值功率的激光脉冲在进行整形时不会打坏挡板。实际操作中可采用电动高精度平移台控制挡光板在 4F 系统中横向移动的距离,控制其移动的精度在微米量级,从而可以精准控制挡住的激光频率分量。缺点是整形后的时域波形峰值低于整形前的峰值,如图 1(a) 所示,即挡住一部分激光光斑时,相应地也会浪费一部分激光能量。

利用上述方法能够对高峰值功率激光脉冲进行整形,从而可以改变激光与晶体的相互作用过程(如光整流效应),并改变或控制该过程产生的太赫兹辐射。

2.2 GaSe 晶体光整流效应产生的太赫兹辐射

光整流是非线性光学中的一种二阶非线性效应。在只考虑二阶非线性的情况下,可以将介质的极化强度 P 分成线性部分 $P^{(1)}$ 和非线性部分 P^{NL} 两部分,介质的极化强度^[21]可以表示为

$$P = P^{(1)} + P^{\text{NL}} = \epsilon_0 [\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} : EE], \quad (3)$$

式中: ϵ_0 为真空介电常数; $\chi^{(r)}$ 代表 r 阶非线性极化率,其中一阶 $\chi^{(1)}$ 为标量,二阶 $\chi^{(2)}$ 为张量; E 为激光电场强度; EE 为激光电场并矢。

若光电场是沿着 z 轴传播的平面波,则有

$$E_n(z, t) = \frac{1}{2} \left\{ E_n(z) \exp[i(k_n z - \omega_n t)] + \text{c. c.} \right\}, \quad (4)$$

$$P_n^{\text{NL}}(z, t) = \frac{1}{2} \left\{ P_n^{\text{NL}}(z) \exp[i(k'_n z - \omega_n t)] + \text{c. c.} \right\}, \quad (5)$$

式中: n 为激光各频率分量; $E_n(z)$ 是激光电场矢量; k_n 是频率为 ω_n 的光电场的波矢; k'_n 是极化波的波矢。

通过麦克斯韦方程组和相关的物质方程可以得到激光在介质中传播的耦合波方程,即

$$\frac{\partial E_n}{\partial z} + \frac{\alpha}{2} E = \frac{i\omega_n}{2\epsilon_0 c n} P^{\text{NL}} \exp(i\Delta k z), \quad (6)$$

式中: Δk 是 k'_n 与 k_n 的差; α 是介质的吸收常数; c 为光速。

设三束沿着 z 轴传播的平面波的频率分别为 ω_1 、 ω_2 和 ω_3 , 相对应的电场强度分别为 E_1 、 E_2 和 E_3 , 此时

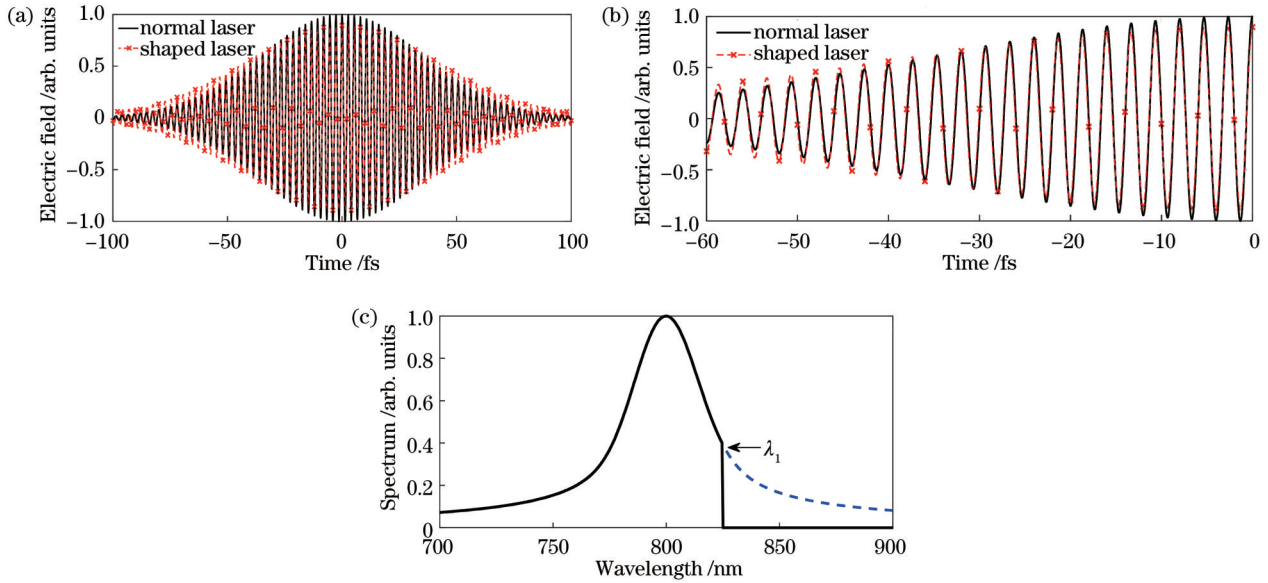


图 1 整形激光脉冲与普通激光脉冲的对比图。(a)整形激光脉冲与普通激光脉冲的波形比较;(b)放大的部分波形;(c)频谱改变示意图

Fig. 1 Comparison of shaped laser pulse and normal laser pulse. (a) Waveform comparison of shaped laser pulse and normal laser pulse; (b) amplified partial waveforms; (c) schematic diagram of changed frequency spectrum

三者的耦合波方程的标量形式可表示为

$$\begin{cases} \frac{dE_1}{dz} + \frac{\alpha_1}{2} E_1 = \frac{i\omega_1}{cn_1} \chi^{(2)} E_3 E_2^* \exp(i\Delta kz) \\ \frac{dE_2}{dz} + \frac{\alpha_2}{2} E_2 = \frac{i\omega_2}{cn_2} \chi^{(2)} E_3 E_1^* \exp(i\Delta kz), \\ \frac{dE_3}{dz} + \frac{\alpha_3}{2} E_3 = \frac{i\omega_3}{cn_3} \chi^{(2)} E_1 E_2 \exp(i\Delta kz) \end{cases} \quad (7)$$

式中: E_1^* 和 E_2^* 为不同频率分量电场强度的复共轭项。

在三波耦合波方程的基础上,假设在 GaSe 非线性晶体中小信号的作用下,泵浦光场强没有发生变化。同时,由于晶体较薄,故可忽略光波吸收、级联效应和和频过程。根据式(7)可以进一步将太赫兹电场、激光电场的耦合波方程简化为

$$\frac{dE_T(z, \omega_T, \omega_n)}{dz} = -\frac{\alpha_T}{2} E_T(z, \omega_T, \omega_n) + \frac{i\omega_T}{cn_T} \chi^{(2)} E(\omega_n + \omega_T) E^*(\omega_n) \exp(i\Delta kz), \quad (8)$$

式中: E_T 为太赫兹波的电场强度; ω_T 为太赫兹波的频率; n_T 为非线性晶体在太赫兹波段的折射率; α_T 为非线性晶体在太赫兹波段的吸收系数,由于 GaSe 晶体在 0.1~30.0 THz 的宽带太赫兹范围内并没有一套严格的参数标准,故本文参考 Chen 等^[22] 的模型和参数来计算该晶体在整个太赫兹波段的吸收系数; $\Delta k = k(\omega_n + \omega_T) - k(\omega_n) - k(\omega_T)$ 为相位失配因子。GaSe 晶体为负单轴晶体,为了能够实现有效的光整流效应,需要进行相位匹配,一般相位匹配方式有 $o+o \rightarrow e$ 型 ($n_e < n_o$) 和 $o+e \rightarrow e$ 型 ($n_e < n_o$), 本文采用前一种相位匹配方式,其中 n_e 和 n_o 为 e 光折射率和 o 光折射率。

$k(\omega_n + \omega_T)$ 和 $k(\omega_n)$ 为超短激光脉冲中相应频率分量的波矢大小, $k(\omega_T)$ 是产生的太赫兹辐射的波矢大小。因此,可得

$$E_T(L, \omega_T, \omega_n) = \frac{i\omega_T}{cn_T} \chi^{(2)} E(\omega_n + \omega_T) E^*(\omega_n) \frac{\exp(i\Delta kL) - \exp(-\alpha_T L/2)}{i\Delta k + \alpha_T/2}, \quad (9)$$

式中: L 为所用非线性晶体的长度。根据已知激光的频谱分布,由式(9)可获得对应产生的太赫兹波的频谱分布,再通过傅里叶逆变换即可获得太赫兹脉冲时域波形。

由于超短激光脉冲中的所有频率分量对太赫兹波的产生都会有一定的贡献,因此通过式(9)对超短激光脉冲的所有频率分量进行积分,就可以得到产生太赫兹波的频域表达式^[23-24],即

$$E_T(L, \omega_T) = \frac{i\omega_T}{cn_T} \chi^{(2)} \int d\omega E(\omega_n + \omega_T) E^*(\omega_n) \frac{\exp(i\Delta kL) - \exp(-\alpha_T L/2)}{i\Delta k + \alpha_T/2}, \quad (10)$$

由傅里叶逆变换和非平稳态下 Wiener-Khinchine 定理的表现形式^[25]可以变换得出太赫兹波场强的时域表达式,即

$$E_T(L, t) = \frac{\chi^{(2)}}{cn_T} \times \frac{\partial}{\partial t} |E(t)|^2 \frac{\exp(i\Delta kL) - \exp(-\alpha_T L/2)}{i\Delta k + \alpha_T/2}. \quad (11)$$

由式(1)、式(2)、式(9)和式(10)可以进一步得到产生的太赫兹波在时域与频域的表达式,即

$$E_T(L, t) = \frac{-4\chi^{(2)}E_0^2}{cn_T\tau^2} t \exp\left(-\frac{2t^2}{\tau^2}\right) \times \frac{\exp(i\Delta kL) - \exp(-\alpha_T L/2)}{i\Delta k + \alpha_T/2}, \quad (12)$$

$$E_T(L, \omega_T) = \frac{i\chi^{(2)}E_0^2\tau}{2\sqrt{2\pi}cn_T} \omega_T \exp\left(-\frac{\tau^2\omega_T^2}{8}\right) \times \frac{\exp(i\Delta kL) - \exp(-\alpha_T L/2)}{i\Delta k + \alpha_T/2}. \quad (13)$$

对超短激光脉冲所有频域分量进行积分就可以得到太赫兹波。上述分析从频域出发获得太赫兹波在频谱上的分布,然后经过傅里叶逆变换获得太赫兹波的时域波形。图 2 是三种脉冲宽度不同的激光脉冲在厚

度为 150 μm 的 GaSe 晶体上产生的太赫兹波的频谱分布和时域波形图。图 2(a) 是根据式 (13) 所模拟出的太赫兹脉冲的频谱图。可以发现:在 7.36 THz 频率附近处因晶体横向声子的吸收,该频率处有很明显的凹陷;由于使用了不同脉冲宽度(100、50、30 fs)的激光脉冲,因此所得太赫兹频谱也不同,脉冲宽度越小,太赫兹的中心频率越高且频谱越宽。图 2(b) 是由傅里逆变换得到的时域波形图。可以看出,频谱图不同时域波形也不同,且脉冲宽度越小,同一时间内的脉冲振荡越多。因此,为了得到太赫兹宽带辐射,可以在所选用的非线性晶体损伤阈值允许的情况下,尽量选用脉冲宽度较窄的超短激光脉冲作为泵浦源。

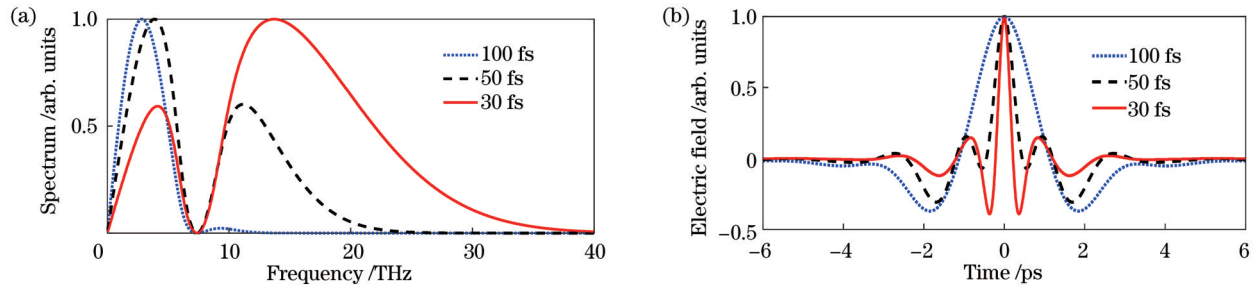


图 2 不同脉冲宽度的激光脉冲产生的太赫兹脉冲频谱及其时域波形。(a) 太赫兹脉冲频谱;(b) 时域波形

Fig. 2 Terahertz pulse spectra and time-domain waveforms generated by laser pulses with different pulse widths. (a) Terahertz pulse spectrum; (b) time-domain waveform

对超短激光脉冲进行整形可能会改变上述产生的太赫兹脉冲辐射。如 2.1 节所述,将泵浦激光中波长大于 λ_1 的部分截断,则泵浦激光中波长大于 λ_1 的部分将被置零。将脉冲宽度为 50 fs、中心波长为 800 nm 的超短激光脉冲在不同波长处截断后的脉冲作为泵浦光,利用式 (10) 进行数值积分即可得到产生的太赫兹波的频谱图,再进行傅里叶逆变换便可以得到太赫兹时域波形图。图 3 是选取不同的 λ_1 产生的不同太赫兹波的频域和时域波形图。由图 3(a) 可以

看出,当选取不同的截止波长(λ_1 为 820、817、814 nm)来对泵浦激光脉冲的频谱进行截断时,随着截止波长的减小,太赫兹波的中心频率逐步降低。这是因为对泵浦激光脉冲进行截断整形后,它的频谱范围变短,不同的截断波长会使得泵浦激光频域的变化也不同,从而产生不同的太赫兹频谱分布。图 3(b) 是对应的太赫兹波的时域波形图,由于在不同的截断波长下产生的太赫兹波的频域不同,故太赫兹波的时域波形图也不同。

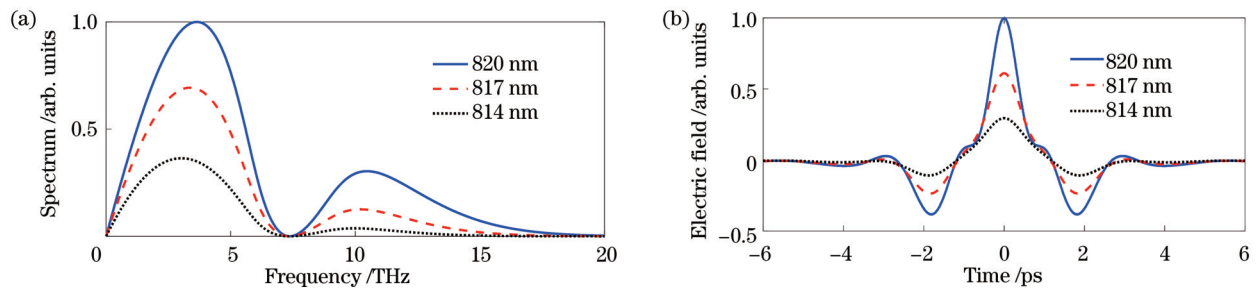


图 3 不同 λ_1 下的太赫兹频谱和对应的时域波形。(a) 太赫兹频谱;(b) 时域波形

Fig. 3 Terahertz spectra and corresponding time-domain waveforms under different λ_1 . (a) Terahertz spectrum; (b) time-domain waveform

3 讨 论

当改变截止波长 λ_1 的值时,得到的太赫兹波的中

心频率与带宽也会发生相应的变化。图 4 展示了激光截止波长与产生的太赫兹脉冲的中心频率和频谱带宽的关系。如图 4(a) 所示,太赫兹脉冲中心频率随着截

止波长的增大(被挡住的部分减小)而增大,即超短激光脉冲不进行整形时有最大的中心频率。如图 4(b)所示,太赫兹波的带宽(半峰全宽)随着截止波长的增

大而增大,即超短激光脉冲不进行整形时,太赫兹脉冲有最大的带宽。

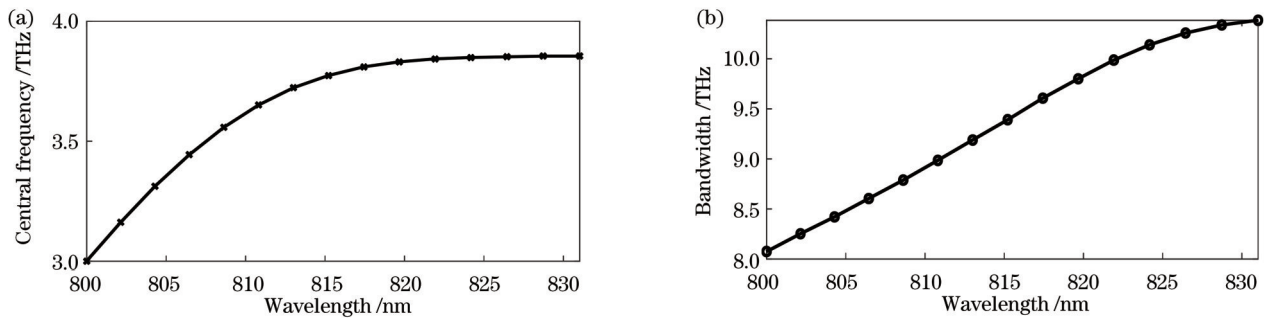


图 4 λ_1 与产生的太赫兹脉冲的中心频率和频谱带宽的关系。(a)中心频率;(b)频谱带宽

Fig. 4 Central frequency and spectral bandwidth of generated terahertz pulse varying with λ_1 . (a) Central frequency; (b) spectral bandwidth

利用挡板直接挡住一部分激光可以对激光包络进行整形,但会损失一部分激光能量。图 5 是泵浦激光脉冲能量与截止波长之间的关系曲线。可以发现,挡板挡住的部分越多,即截止波长越小,泵浦光脉冲的能量将会越低,损失的能量越多。当激光被挡住一半时,损失的能量占总能量的一半。该能量损失也会造成产生的太赫兹波的能量损失。图 6 是产生的太赫兹脉冲能量与截止波长的关系图。可以发现,截止波长越小,即被挡住部分越多,产生的太赫兹波脉冲的能量越小。

光整流效应产生的太赫兹脉冲的频谱分布和波形。该方法简单可行,不需要光调制器即可改变高峰值功率激光脉冲的包络,从而避免了高峰值功率激光脉冲对调制器的损伤。此外,还可以采用不透光的细丝(金属丝等)在 4F 系统的两个透镜中直接挡住中间的激光频率分量,对激光脉冲进行整形,类似的方法也被用于改变激光脉冲与等离子体作用产生的太赫兹辐射^[26]。相应原理为在 4F 整形系统中插入不透光的细丝,达到对激光脉冲进行整形的目的,从而改变激光脉冲的等离子体成丝和产生太赫兹辐射的过程,进而实现对太赫兹脉冲的调制。类似的脉冲整形方法给未来进行相关的实验研究提供了很好的理论参考。

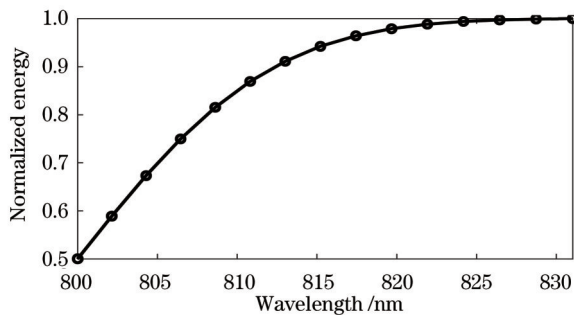


图 5 λ_1 对泵浦激光脉冲能量的影响

Fig. 5 Influence of λ_1 on energy of pump laser pulse

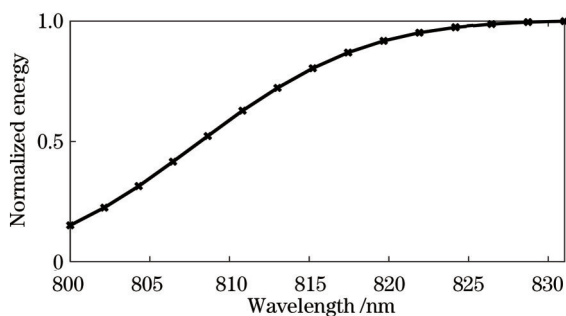


图 6 λ_1 与产生的太赫兹脉冲能量的关系

Fig. 6 Relationship between λ_1 and generated terahertz pulse energy

采用 4F 脉冲整形系统直接从边沿截断激光脉冲频谱分量,不仅改变了激光脉冲的时域包络,还改变了

4 结 论

提出了利用整形激光脉冲与 GaSe 晶体光整流效应产生频谱可调的太赫兹脉冲辐射的实现途径,即采用不透光的挡板对 4F 整形系统中的泵浦激光频谱分量进行遮挡,从而实现对高峰值功率激光脉冲的整形,即改变激光脉冲包络和其产生的太赫兹频谱分布。利用不同脉冲宽度的高斯型超短激光脉冲产生了不同中心频率与带宽的太赫兹脉冲,当选取的激光脉冲的脉冲宽度越短时,产生的太赫兹脉冲就越宽。整形中对超短激光脉冲中波长大于 λ_1 的部分采用挡板进行直接截断处理,从而可以对高峰值功率激光脉冲进行整形,避免了激光对调制器的损伤。研究发现,改变 λ_1 可以对产生的太赫兹脉冲的中心频率和带宽进行调制,当 λ_1 的取值越小时,被截断的激光分量就越多,此时产生的太赫兹波的中心频率与带宽就越小,并且会损失部分激光脉冲能量,从而使得太赫兹脉冲能量变小。本研究为基于 GaSe 晶体光整流效应产生频谱可调的宽带太赫兹脉冲辐射提供了新的思路,为相关的实验研究提供了参考。

参 考 文 献

- [1] Hafez H A, Chai X, Ibrahim A, et al. Intense terahertz

- radiation and their applications[J]. *Journal of Optics*, 2016, 18(9): 093004.
- [2] Schmuttenmaer C A. Exploring dynamics in the far-infrared with terahertz spectroscopy[J]. *Chemical Reviews*, 2004, 104(4): 1759-1779.
- [3] Ferguson B, Zhang X C. Materials for terahertz science and technology[J]. *Nature Materials*, 2002, 1(1): 26-33.
- [4] 李依凡, 王雪敏, 曹林洪, 等. 太赫兹宽谱源的研究进展[J]. *太赫兹科学与电子信息学报*, 2016, 14(5): 661-667.
Li Y F, Wang X M, Cao L H, et al. Research progress of the broadband terahertz source[J]. *Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology*, 2016, 14(5): 661-667.
- [5] 张红涛, 蔡永胜, 王宇, 等. 太赫兹时域光谱在农业领域的应用研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2022, 59(23): 2330001.
Zhang H T, Cai Y S, Wang Y, et al. Research progress on the application of terahertz time domain spectroscopy in agriculture [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2022, 59(23): 2330001.
- [6] 孙一健, 王继芬. 太赫兹时域光谱技术在食品、药品和环境领域中的应用研究进展[J]. *激光与光电子学进展*, 2022, 59(16): 1600003.
Sun Y J, Wang J F. Research progress of terahertz time-domain spectroscopy in food, drugs, and environment[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2022, 59(16): 1600003.
- [7] 张彤, 黄昊翀, 张自力, 等. 基于太赫兹时域光谱技术的塑料检测[J]. *中国激光*, 2022, 49(13): 1311001.
Zhang T, Huang H C, Zhang Z L, et al. Detection of plastics based on terahertz time-domain spectroscopy[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2022, 49(13): 1311001.
- [8] Khenata R, Bouhemadou A, Sahnoun M, et al. Elastic, electronic and optical properties of ZnS, ZnSe and ZnTe under pressure[J]. *Computational Materials Science*, 2006, 38(1): 29-38.
- [9] Shi W, Ding Y J, Femelius N, et al. Efficient, tunable, and coherent 0.18–5.27-THz source based on GaSe crystal[J]. *Optics Letters*, 2002, 27(16): 1454-1456.
- [10] Shi W, Ding Y J. Tunable terahertz waves generated by mixing two copropagating infrared beams in GaP[J]. *Optics Letters*, 2005, 30(9): 1030-1032.
- [11] Stothard D J M, Edwards T J, Walsh D, et al. Line-narrowed, compact, and coherent source of widely tunable terahertz radiation[J]. *Applied Physics Letters*, 2008, 92(14): 141105.
- [12] Aggarwal R L, Lax B, Favrot G. Noncollinear phase matching in GaAs[J]. *Applied Physics Letters*, 1973, 22(7): 329-330.
- [13] Kawase K, Hatanaka T, Takahashi H, et al. Tunable terahertz-wave generation from DAST crystal by dual signal-wave parametric oscillation of periodically poled lithium niobate[J]. *Optics Letters*, 2000, 25(23): 1714-1716.
- [14] 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.
- [15] Huang J G, Huang Z M, Tong J C, et al. Intensive terahertz emission from GaSe_{0.91}S_{0.09} under collinear difference frequency generation[J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 103(8): 081104.
- [16] Angelini V, Casalboni M, Grandolfo M, et al. Exciton thermoabsorption of GaSe_{1-x}S_x solid solutions[J]. *Physica Status Solidi (b)*, 1981, 105(1): 63-68.
- [17] Weiner A M. Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2000, 71(5): 1929-1960.
- [18] Weiner A M. Ultrafast optical pulse shaping: a tutorial review[J]. *Optics Communications*, 2011, 284(15): 3669-3692.
- [19] 邹华, 周常河. 飞秒脉冲时空变换整形技术[J]. *激光与光电子学进展*, 2005, 42(2): 2-7.
Zou H, Zhou C H. Femtosecond pulse shaping with space-time conversion technique[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2005, 42(2): 2-7.
- [20] 姚云华, 卢晨晖, 徐淑武, 等. 飞秒激光脉冲整形技术及其应用[J]. *物理学报*, 2014, 63(18): 184201.
Yao Y H, Lu C H, Xu S W, et al. Femtosecond pulse shaping technology and its applications[J]. *Acta Physica Sinica*, 2014, 63(18): 184201.
- [21] 石顺祥, 陈国夫, 赵卫. 非线性光学[M]. 2版. 西安: 西安电子科技大学出版社, 2012: 164-138.
Shi S X, Chen G F, Zhao W. *Nonlinear optics*[M]. 2nd ed. Xi'an: Xidian University Press, 2012: 164-138.
- [22] Chen C W, Tang T T, Lin S H, et al. Optical properties and potential applications of ϵ -GaSe at terahertz frequencies[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2009, 26(9): A58-A65.
- [23] 崔德勇. 基于光学方法产生太赫兹辐射的理论研究[D]. 成都: 电子科技大学, 2012: 19-21.
Cui D Y. *Theoretical study of terahertz radiation generation based on optical method*[D]. Chengdu: University of Electronic Science and Technology of China, 2012: 19-21.
- [24] 陈兴. 光整流法产生太赫兹辐射强度与转换效率的理论研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2014: 13-16.
Chen X. *Theoretical study of terahertz radiation intensity and conversion efficiency via optical rectification*[D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2014: 13-16.
- [25] Dechant A, Lutz E. Wiener-Khinchin theorem for nonstationary scale-invariant processes[J]. *Physical Review Letters*, 2015, 115(8): 080603.
- [26] Yang N, Du H W. THz pulse generation from shaped femtosecond laser pulses interaction with gas-plasma[J]. *Optics Express*, 2014, 22(21): 25494-25499.

Tunable Broadband Terahertz Wave Generation Based on Optical Rectification Effect of Shaped Ultrashort Laser Pulses Interacting with GaSe Crystal

Li Qiangshuang^{1,2}, Sun Changming^{1,2}, Fan Shuzhen^{3,4}, Du Haiwei^{1,2*}

¹*School of Measuring and Optical Engineering, Nanchang Hangkong University, Nanchang 330063, Jiangxi, China;*

²*Key Laboratory of Nondestructive Testing, Ministry of Education, Nanchang Hangkong University, Nanchang 330063, Jiangxi, China;*

³*Center for Optics Research and Engineering, Shandong University, Qingdao 266237, Shandong, China;*

⁴*Key Laboratory of Laser & Infrared System, Ministry of Education, Shandong University, Qingdao 266237, Shandong, China*

Abstract

Objective Terahertz wave refers to the electromagnetic wave whose frequency and wavelength are in the ranges of 0.1–10.0 THz and 30–3000 μm , respectively. Throughout the entire electromagnetic spectrum, the terahertz band is located between electronics and optical bands, so it is also called the "terahertz gap". Terahertz wave has some special properties due to its special band, such as low energy, high penetration, and transient. With the development of research and the maturity of technology, terahertz wave has shown bright application prospects in material science, biomedicine, imaging, and communication in recent years. Broadband terahertz radiation source is an important basis for spectral technology in the terahertz band. Therefore, it is of great significance to develop broadband terahertz radiation sources. Since GaSe crystal has a high light transmission and a small absorption coefficient, it has a good application in the generation and detection of broadband terahertz radiation. In this study, GaSe crystal is used to generate tunable broadband terahertz pulses through the optical rectification effect, which provides new ideas for the generation of tunable broadband terahertz pulse radiation.

Methods In light of nonlinear optics, this paper studies the tunable broadband terahertz radiation generated through the optical rectification effect of shaped ultrashort laser pulses interacting with GaSe crystal, and the process is simulated by numerical calculations. It is found that by adjusting the laser spectrum component with a $4F$ shaping system, some components whose wavelengths are greater than λ_1 in the frequency domain are blocked and truncated. Different shaped ultrashort laser pulses are obtained by varying the value of λ_1 . The adjustable shaped pulses and the optical rectification effect of GaSe crystal can be utilized to produce tunable broadband terahertz radiation. This scheme makes the center frequency of the terahertz pulse modulated from the high frequency to the low frequency, and the bandwidth is also changed.

Results and Discussions The terahertz radiation from GaSe crystal with different pulse durations is given by numerical methods (Fig. 2). Tunable terahertz pulses pumped by the shaped ultrashort laser pulses with a duration of 50 fs and a center wavelength of 800 nm are obtained, and their properties are given in detail. When the cutoff wavelength λ_1 is changed, the center frequency and bandwidth (full width at half maximum) of the generated terahertz pulses are also changed accordingly (Fig. 3 and Fig. 4). In the shaping process, some energy of the laser pulse is lost. More energy of the pump pulse is lost at a smaller cutoff wavelength (Fig. 5). When half of the energy is blocked, the lost energy accounts for half of the total energy. Such energy loss also results in the energy loss of the resulting terahertz pulses (Fig. 6). The smaller the cutoff wavelength is, the smaller the terahertz pulse energy is. The proposed method is simple and feasible, and can change the envelope of the high-peak-power laser pulse without requiring any light modulator, thus avoiding the damage of the high-peak-power laser pulse to the modulator. Such pulse shaping methods provide a good theoretical reference for future experimental studies.

Conclusions In summary, this paper presents a simple way to generate tunable terahertz pulse radiation by using the optical rectification effect of shaped ultrashort laser pulses on the GaSe crystal. The pump laser spectrum component in the $4F$ shaping system is shielded by an opaque baffle so that the high-peak-power laser pulse can be shaped, and the envelope of the laser pulse and the terahertz spectrum distribution generated by it can be changed. It is found that the center frequency and bandwidth of the generated terahertz pulse can be adjusted by changing the cutoff wavelength. This idea might offer new methods to generate tunable broadband terahertz pulses based on the optical rectification effect of GaSe crystal, which provides a good reference for related experiments.

Key words nonlinear optics; terahertz; GaSe crystal; optical rectification; shaped laser pulse; tunability