

不同掺杂 $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 单晶的 THz 辐射特性研究*

王秀敏^{1)†} 徐新龙^{1)‡} 杨玉萍¹⁾ 施宇蕾¹⁾ 李福利²⁾
汪 力^{1)†} 张希成³⁾ Hyun-Shik Kang⁴⁾ Tae-Kyu Kim⁵⁾

¹⁾ 中国科学院物理研究所光物理实验室, 北京 100080)

²⁾ 首都师范大学物理系, 北京 100037)

³⁾ Center for Terahertz Research, Rensselaer Polytechnic Institute, Troy, NY 12180, USA)

⁴⁾ Department of Physics, College of Education, Chonbuk National University, Chonju, Korea)

⁵⁾ Department of Science Education, Chonju National University of Education, Chonju, Korea)

(2003 年 6 月 10 日收到, 2003 年 7 月 25 日收到修改稿)

利用太赫兹 (THz) 时域光谱技术研究了不同掺杂的 $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 单晶产生 THz 辐射的特性. 实验发现, 当晶体的直流电阻率 $\rho > 10^2 \Omega \cdot \text{cm}$ 时, 晶体产生 THz 辐射的效率随着晶体电阻率的增加而增加, 但当电阻率 $\rho > 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 时, 晶体产生 THz 辐射的效率出现饱和甚至可能下降. 光谱测量结果表明, 此类晶体在 THz 波段的透过率基本上取决于其低频电阻率, 但除了晶体对 THz 辐射的吸收这一因素外, 其色散性质的变化对晶体的 THz 辐射性能也有重要的影响. 因此, 当 ZnCdTe 晶体用于 THz 辐射产生和探测时, 仅仅用材料的 Hall 电阻率不能完全表征器件的性能.

关键词: THz, ZnCdTe, 时域光谱

PACC: 0765, 4270F, 4280W

1. 引 言

利用非线性光学晶体产生和探测太赫兹 (THz) 脉冲是 THz 时域光谱系统最常用的方法之一, 其中的机理分别是瞬态光整流效应和线性电光效应, 整个系统的频率响应可以超过 60 THz^[1,2]. 利用电光晶体探测 THz 脉冲还具有光学并行处理的能力和优越的探测信噪比^[3]. 常用的材料有 ZnTe, ZnSe, CdTe, InP, GaAs, LiNbO₃, LiTaO₃ 和有机晶体 DAST 等. 总体上 ZnTe 晶体的综合性能优于其他材料, 在 THz 光谱探测和成像研究中被广泛应用^[4].

通常认为, 晶体中的载流子越少, 电阻率就越高, 晶体对 THz 辐射的吸收和散射就越少, 作为 THz 辐射产生器件, 产生 THz 辐射的效率也就越高. 因此, 通过掺杂来降低晶体中的载流子浓度是晶体生长中常用的手段, 电阻率已成为表征此类晶体质量的一个重要指标. 最近的研究表明, 在 ZnTe 110 单

晶中加入适量的 Cd, 当组分比 $x = 0.05$ 时, 由于晶体结构质量的改善, $Zn_{1-x}Cd_xTe$ 110 单晶通过光整流效应产生 THz 辐射的效率最高. 此外, 对于不同掺杂的 $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 单晶, 当晶体的电阻率 $\rho \geq 10^2 \Omega \cdot \text{cm}$ 时, 才能有效产生 THz 辐射, 这一现象基本上可以从晶体直流电阻率的不同得到解释^[5]. 但是, 反映材料低频电阻特性的 Hall 电阻率是否能够表征晶体在 THz 波段的电阻特性并直接与 THz 辐射产生和探测器件的性能相关联? 这一问题需要进一步研究. 本文中, 我们利用 THz 时域光谱分析方法, 探测了一组 Li 和 In 掺杂的 $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 单晶产生 THz 辐射的效率, 并测量了这些晶体在这一频率范围的吸收谱以及由晶体色散特性决定的 THz 辐射与激发光脉冲的速度匹配性能. 发现掺杂使这些晶体一方面改变了 THz 波段的吸收率, 同时其折射率在光频和 THz 频率也发生了系统性的变化. 作为 THz 辐射的产生材料, 不同的掺杂不仅影响对 THz 辐射的吸收, 而且极大地改变了速度匹配条件, 两者共同决定了 THz 辐射源的性能. 由于电光效应

* 中国科学院海外杰出学者基金(批准号: 2001-1-6)和国家自然科学基金重大项目(批准号: 10390160)资助的课题.

† E-mail: wangli@aphy.iphy.ac.cn

可以看成是光整流的逆过程,因此本文的结果同样适用于对基于电光取样原理的 THz 辐射探测器件的分析.

2. 样品和实验装置

ZnCdTe 单晶通常是一种 p 型半导体材料,其电

阻率一般不太高.要改变 ZnCdTe 单晶的电阻率可以通过掺杂来实现.实验所用的不同元素掺杂和不同掺杂水平的 $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 单晶是由韩国全州国立大学物理系生长的.掺杂元素分别为 In 和 Li.施主元素 In 掺杂可使材料的电阻率提高,而受主元素 Li 掺杂则使晶体的电阻率降低.这些晶体样品的参数见表 1.

表 1 不同掺杂 $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 单晶的参数

样品	In 掺杂				Li 掺杂					
	3.54×10^7	6.03×10^5	3580	241	560	342	5.01	1.92	1.0	0.38
电阻率 $\rho/\Omega \cdot \text{cm}$					0.926	1.428	1.117	1.508	1.326	0.896
厚度 d/mm	1.078	0.959	1.296	0.979						

THz 时域光谱实验是在中国科学院物理研究所光物理实验室进行的.实验系统主要由飞秒激光器(中心波长为 800 nm,脉冲宽度为 100 fs) THz 辐射产生装置、THz 辐射探测装置和时间延迟控制系统组成,其光路如图 1 所示.钛宝石激光器 L 产生的激光脉冲经过分束镜 BS 分为两束,一束激光脉冲(激发脉冲)经过偏振片 P_1 起偏、斩波器 C 调制后,通过时间延迟系统 TDS 入射到透镜 L_1 ,经透镜 L_1 聚焦到用于信号产生的晶体 TE 上,通过光整流效应产生 THz 脉冲. THz 脉冲经过离轴抛物面镜 PM_1 、 PM_2 聚焦到样品 S 上,再经过离轴抛物面镜 PM_3 、 PM_4 聚焦,通过镀膜分光镜 P 到达另一块电光晶体 TS 上.另一束激光脉冲(探测脉冲)经过偏振片 P_2 起偏和透镜 L_2 聚焦,经过镀膜分光镜 P 反射,在探测晶体 TS 上聚焦到同一位置.在没有 THz 脉冲信号时,由光电二极管 PD 探测到的两束偏振光大

小相等,通过锁相放大器 LA 检测到的输出为零.当探测脉冲和 THz 脉冲在电光晶体中相遇时,探测脉冲的偏振态被 THz 脉冲电场调制后,在锁相放大器中产生与 THz 脉冲电场成比例的电流输出.通过时间延迟装置改变探测脉冲与 THz 脉冲的光程差,使探测脉冲在不同的时刻对 THz 脉冲的电场强度进行取样测量,得到 THz 辐射脉冲的时域波形.为了消除空气中水分对 THz 辐射的吸收,整个 THz 脉冲光路均安装在真空室 VC 中.

3. 结果和讨论

我们首先测量了不同掺杂 $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 单晶在相同实验条件下产生 THz 辐射的效率,测量结果如图 2 所示.图 2 中横坐标为样品的 Hall 电阻率 ρ ,纵坐标是对样品厚度归一化后的电场振幅峰值,

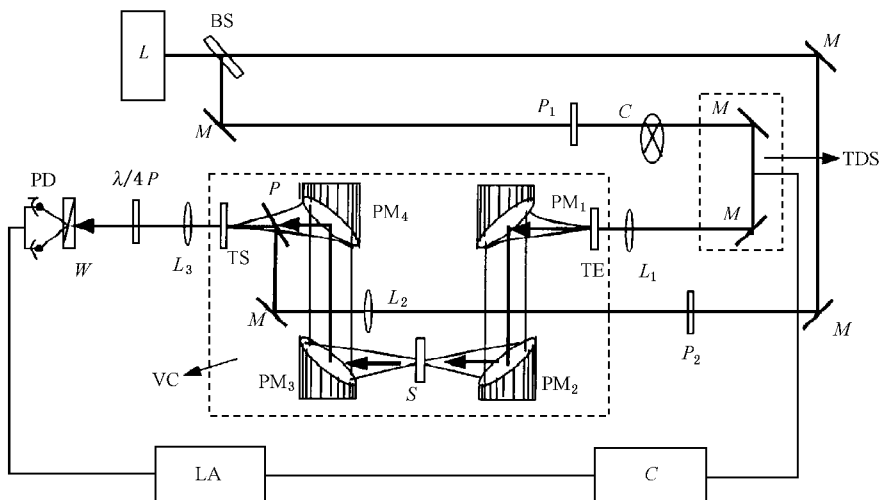


图 1 THz 时域光谱测量系统光路图

代表各个晶体产生 THz 辐射的效率.从图 2 可以看出,低频电阻率很低的样品($\rho < 10 \Omega \cdot \text{cm}$),是不能作为 THz 辐射产生器件的.随着电阻率的增大,晶体产生 THz 辐射的效率一般也增大.但是,当电阻率增大到一定程度($\rho > 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$)后,产生 THz 辐射的效率就不再增加甚至下降.这一现象表明,晶体中的载流子密度在很大程度上决定了 THz 辐射的产生效率.

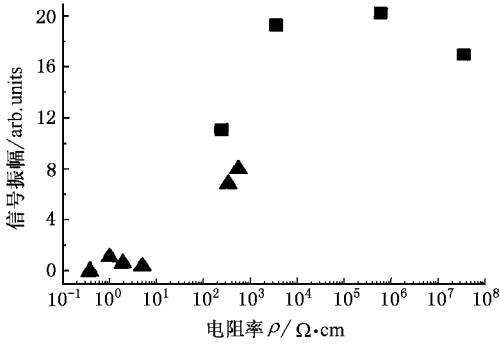


图2 不同掺杂的 $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 单晶辐射 THz 脉冲的效率 ▲表示掺杂 Li 的晶体 ■表示掺杂 In 的晶体

为了进一步分析不同样品产生 THz 辐射效率不同的原因,我们测量了不同晶体在 0.3—3.0 THz 频率范围的吸收谱.对于 Li 掺杂浓度较高的四种 $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 单晶,我们发现晶体在 THz 波段的透过率很小,说明低频电阻率较低($\rho < 10 \Omega \cdot \text{cm}$)的晶体之所以不能充当 THz 辐射的产生器件确是因为它们对 THz 辐射的吸收太强.由于 Li 掺杂使晶体中的空穴浓度增加,这一结果是在预料之中的.因此,下面着重分析四种 In 掺杂 $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 单晶在 THz 波段的介电响应.

首先记录无样品时的 THz 辐射时间波形作为参考波形 $R(t)$,然后测量放样品后的信号波形 $S(t)$.对样品的参考波形和信号波形分别进行傅里叶变换得到 THz 电场的复振幅谱 $R(\omega) = r_r(\omega) e^{-j\phi_r(\omega)}$, $S(\omega) = r_s(\omega) e^{-j\phi_s(\omega)}$.我们发现,除了由差频多声子过程产生的较小附加结构外,吸收谱的主要特征反映的是晶体 TO 声子吸收边的性质^[6].为了便于比较,我们分别计算参考波和样品波的能量 $I_r = \sum_{\omega} r_r^2(\omega)$ 和 $I_s = \sum_{\omega} r_s^2(\omega)$,得到与频率无关的不同掺杂 $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 单晶对 THz 辐射的吸收系数 $\alpha = \ln(I_r/I_s)/d$,这里 d 为样品的厚度.结果如图 3 所示.

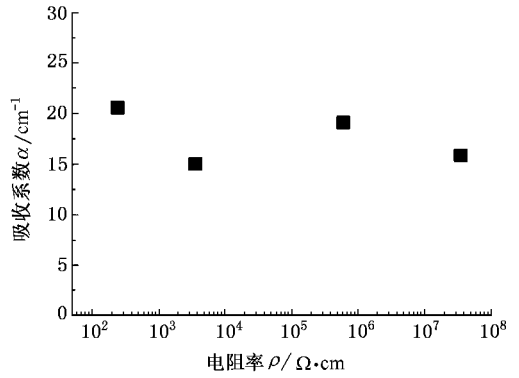


图3 不同样品对 THz 辐射的平均吸收系数

比较图 2 和图 3 可以看出,总体上样品在 THz 波段的吸收随着低频电阻率的增大而减小,表明晶体中的载流子密度是影响晶体产生 THz 辐射效率的重要因素.但是吸收的变化并不能完全说明全部的实验数据.如电阻率 $\rho = 3.54 \times 10^7 \Omega \cdot \text{cm}$ 的样品比 $\rho = 6.03 \times 10^5 \Omega \cdot \text{cm}$ 的样品对 THz 辐射信号的吸收要小,但产生 THz 辐射的效率反而更低.为了寻求进一步的解释,我们对这些样品中激发光脉冲和 THz 辐射信号的速度匹配条件进行了分析.

速度匹配类似于一般非线性光学过程中的相位匹配,由产生 THz 辐射的激光脉冲在晶体中传播的群速折射率 n_g 与 THz 脉冲在晶体中的相速折射率 n 的失配量 $\Delta n = |n_g - n|$ 表示^[6],描述两者在晶体中传播时同步的程度.在其他条件相同的情况下, Δn 越小,晶体的速度匹配越好,晶体产生 THz 辐射的效率就越高、高频响应也越好.在作为 THz 辐射探测晶体时也有类似的效应.

由于实验中透过不同样品的信号波形差别不大,利用上述实验数据,可以计算出不同 In 掺杂的 $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 单晶内 THz 脉冲与频率无关的平均折射率 $n = 1 + \frac{c\Delta t}{d}$,其中 Δt 是样品波形峰值与参考波形峰值之间的时间延迟, c 为真空中的光速, d 为样品的厚度.为了测量中心波长为 800 nm 的激光脉冲的群折射率 n_g ,首先记录一个参考波形,然后把样品放到激发光的光路中,记录样品的插入导致的参考波形时间延迟,由此获得激光脉冲在晶体中的群折射率 n_g .图 4 为激发脉冲和 THz 波在不同 In 掺杂 $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 单晶中的速度失配量 $\Delta n = |n_g - n|$.

在这里,较大的实验误差主要来自于晶体的

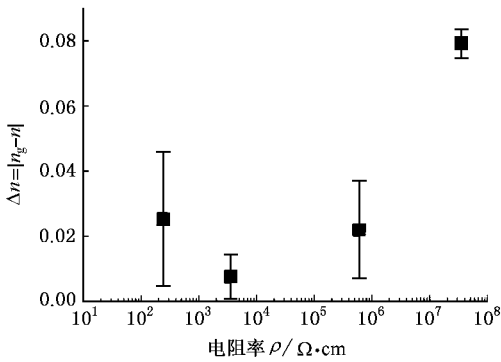


图4 不同样品的速度失配量 Δn

厚度测量. 我们可以看到, 对于四种不同 In 掺杂的 $\text{Zn}_{0.95}\text{Cd}_{0.05}\text{Te}$ 110 单晶, 速度匹配曲线(图 4)和 THz 辐射性能曲线(图 2)存在高度的关联性. 这一实验观察表明, 随着掺杂浓度的增加, 除了晶体在 THz 波段的吸收发生变化以外, 其近红外和 THz 波段的色散性质也发生了变化, 从而改变了 THz 辐射产生过程中晶体的速度匹配性能. 电阻率为 $3.54 \times 10^7 \Omega \cdot \text{cm}$ 的样品尽管对 THz 辐射的吸收更小, 但存在很大的速度失配, 导致其总体辐射效率低于电阻率为

$6.03 \times 10^5 \Omega \cdot \text{cm}$ 的样品. 由于速度失配条件随着 In 掺杂的增大而变坏, 我们的实验结果表明, 在 ZnCdTe 单晶的生长中, 单纯通过高的 In 掺杂率以补偿晶体中的空穴并不能保证提高晶体作为 THz 辐射产生和探测器件的性能. 为了全面表征晶体的质量, 除了电阻率以外, 晶体的折射率也应作为重要的参数指标.

4. 结 论

不同掺杂的 $\text{Zn}_{0.95}\text{Cd}_{0.05}\text{Te}$ 110 单晶, 当它们的电阻率很低时 ($\rho < 10 \Omega \cdot \text{cm}$), 不能作为产生 THz 辐射的电光晶体. 当晶体的电阻率 $\rho > 10^2 \Omega \cdot \text{cm}$ 时, 随电阻率的增大, 晶体对 THz 辐射的吸收减小, 晶体产生的 THz 辐射信号也增大. 当 In 的掺杂浓度继续提高, 使电阻率 $\rho \geq 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 时, 晶体产生 THz 辐射的效率不再增加甚至下降, 主要原因是晶体中的速度匹配条件变差. 这一结果为应用于 THz 辐射产生和探测的 ZnCdTe 晶体的表征提供了更为全面的综合判据.

- [1] Wu Q, Litz M, Zhang X C 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 2924
 [2] Leitenstorfer A, Hunsche S, Shah J *et al* 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 1516
 [3] Carrig T J, Rodriguez G, Clement T S *et al* 1995 *Appl. Phys. Lett.* **66** 121
 [4] Hornak J 2002 *The Encyclopedia of Imaging Science & Technology*,

Imaging Technology & Systems Section(Vol.2)(New York : Wiley) p1993

- [5] Liu K, Kang H S, Kim T K *et al* 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 4115
 [6] Schall M, Walther M, Jepsen P U 2001 *Phys. Rev. B* **64** 94301
 [7] Gallot G, Grischkowsky D 1999 *J. Opt. Soc. Am. B* **16** 1204

Study of differently doped $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 single crystals as THz emitters^{*}

Wang Xiu-Min^{1,2)} Xu Xin-Long^{1,2)} Yang Yu-Ping¹⁾ Shi Yu-Lei¹⁾

Li Fu-Li²⁾ Wang Li¹⁾ Zhang X. C.³⁾ Kang Hyun-Shik⁴⁾ Kim Tae-Kyu⁵⁾

¹⁾ *Laboratory of Optical Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China*

²⁾ *Department of Physics, Capital Normal University, Beijing 100037, China*

³⁾ *Center for Terahertz Research, Rensselaer Polytechnic Institute, Troy, NY 12180, USA*

⁴⁾ *Department of Physics, College of Education, Chonbuk National University, Chonju, Korea*

⁵⁾ *Department of Science Education, Chonju National University of Education, Chonju, Korea*

(Received 10 June 2003 ; revised manuscript received 25 July 2003)

Abstract

Properties of differently doped $Zn_{0.95}Cd_{0.05}Te$ 110 crystals as terahertz (THz) wave emitter are studied using THz time-domain spectroscopy. It is observed that the THz generation efficiency increases as the DC resistivity increases when the resistivity of crystals is greater than $10^2 \Omega \cdot \text{cm}$, but the efficiency saturates and even declines when the resistivity goes beyond $10^6 \Omega \cdot \text{cm}$. It is revealed that the dispersion properties of crystals play an important role, besides the doping-dependent absorption in THz region.

Keywords : THz, ZnCdTe, time-domain spectroscopy

PACC : 0765, 4270F, 4280W

^{*} Project supported by the Overseas Outstanding Scholar Fund from Chinese Academy of Sciences (Grant No. 2001-1-6) and the Major Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10390160).

[†] E-mail : wangli@aphy.iphy.ac.cn