

ZnTe 晶体中光学整流产生的 THz 辐射 及其电光探测研究^{*}

刘 锐 顾春明 贺莉蓉 吴 森 沈文忠[†]

(上海交通大学物理系凝聚态光谱与光电子物理实验室, 上海 200030)

小川博司 郭其新

(佐贺大学理工学部电气与电子工程系, 日本佐贺 840-8502)

(2003 年 6 月 6 日收到, 2003 年 11 月 3 日收到修改稿)

借助抽运-探测技术研究了 ZnTe 晶体中光学整流产生的太赫兹(THz)辐射, 利用 ZnTe 晶体的线性电光效应探测 THz 辐射场分布, 观察到了较窄(约为 0.2 ps)的 THz 场分布及相应较宽(响应超过 4 THz, 半峰宽约为 2.4 THz)的 THz 频谱, 并运用琼斯矩阵对实验结果进行了理论拟合. 研究了飞秒激光脉冲波长(750—850 nm)脉冲宽度(56—225 fs)和晶体旋转与 THz 辐射产生的关系. 同时改变探测光偏振方向进行偏振调制, 并从理论上分析了偏振调制对 THz 辐射探测的影响.

关键词: THz 辐射, 光学整流, 电光探测, ZnTe

PACC: 7340E, 7820J

1. 引 言

随着太赫兹(THz)辐射在成像技术、材料分析测试、光谱探测、医学诊断等领域的广泛应用而倍受人们关注, THz 辐射的产生和探测已成为一个十分活跃的研究领域. 目前, 人们主要利用超短激光脉冲聚焦到晶体上, 通过光学整流或者光电导偶极天线产生 THz 辐射^[1]. 材料科学的迅速发展, 使电光晶体种类越来越多, 且大都已商业化. 电光晶体的光学整流形成一极化脉冲, 此脉冲在晶体中的传播引起辐射, 当脉冲传播速度大于辐射相速度时, 产生类 Cherenkov 辐射^[2]. 在最初利用飞秒激光脉冲产生 THz 辐射的光学整流实验中, Auston 等^[2,3]首先研究了 LiTaO₃ 电光材料中超短脉冲的传播特性, 观察到 Cherenkov 锥所产生的 THz 波段脉冲远红外辐射. 自此以后电光晶体中的光学整流过程被认为是产生 THz 辐射的一个直接而又有效的技术^[1,4], 并且已经成为产生 THz 辐射最主要的方法. 当高阶(高于二阶)非线性效应不显著时, 光学整流过程中的极化强

度将随着激发光强度呈线性变化^[5].

由于 ZnTe 是一种具有良好相位匹配特性和较好电光性质的晶体, 目前已成为最常用的产生和探测 THz 辐射的电光材料^[6,7]. 在以往的实验中, 通常采用两块 ZnTe 晶体, 一块作为 THz 场发射源, 另一块用于探测 THz 辐射场分布^[8,9]. 这样得到的 THz 场分布较宽(约为 2 ps), 反映在 THz 谱上频谱较窄. 在本文中, 我们仅采用一块 ZnTe 晶体, 在超短抽运光脉冲作用下产生 THz 辐射, 同时依靠其线性电光特性利用探测光进行 THz 辐射场探测, 由于不同的探测方法, 我们观察到宽度约为 0.2 ps 的 THz 场分布及相应较宽(响应超过 4 THz, 半峰宽约为 2.4 THz)的 THz 频谱. 进而从实验和理论两个方面深入而系统地研究了超短激光脉冲波长、宽度和晶体旋转对 ZnTe 晶体中 THz 辐射产生以及偏振调制对 THz 辐射探测的影响. 这种方法在研究晶体本身的 THz 辐射产生及探测方面具有简便、可行的特点.

2. 实 验

实验研究采用的 <110> 立方闪锌矿结构 ZnTe

^{*} 国家杰出青年科学基金(批准号:10125416)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: wzhen@sjtu.edu.cn

晶体是由俄罗斯 RMT 公司生产,样品两面抛光,尺寸为 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$,厚度为 1.5 mm . 利用此 ZnTe 晶体产生并由电光效应探测 THz 辐射的实验光路如图 1 所示. 钛宝石激光器(Spectral Physics 公司产

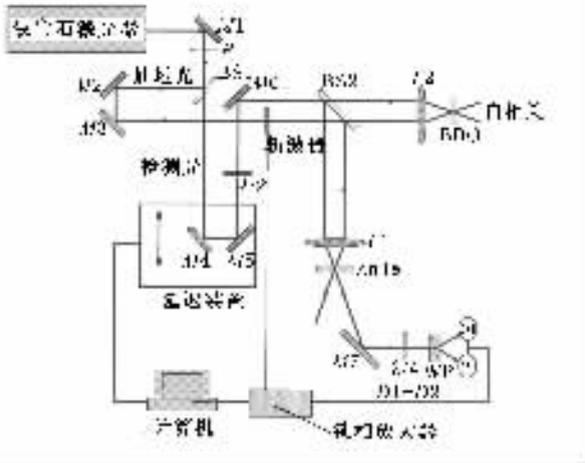


图 1 利用 ZnTe 晶体光学整流产生并由电光效应探测 THz 辐射的实验光路图 $M1-M7$ 为全反射镜, P 为偏振片, $BS1$ 和 $BS2$ 均为反射透射分束比为 9:1 的分束片, $\lambda/2$ 和 $\lambda/4$ 分别为半波片和四分之一波片, $L1$ 和 $L2$ 为凸透镜, WP 为 Wollaston 棱镜, $D1$ 和 $D2$ 为差分探测器的两个输入端

品, Tsunami 3960D) 产生一脉冲宽度为 100 fs 、重复频率为 82 MHz 的脉冲激光, 经过偏振片 P 后形成一束线偏振光, 并由分束片 $BS1$ 分成抽运光和探测光. 抽运光经过反射镜 $M2$ 和 $M3$ 后, 通过由 Perkin Elmer 公司生产的 7265 DSP 锁相放大器控制的斩波器, 经分束片 $BS2$ 反射后通过透镜 $L1$ 聚焦到 ZnTe 晶体上. 探测光则通过计算机控制的延迟装置, 经过一半波片($\lambda/2$), 再经分束片 $BS2$ 反射后通过透镜

$L1$ 与抽运光同时聚焦到 ZnTe 晶体上. 让透过 ZnTe 晶体的探测光经反射镜 $M7$ 和四分之一波片($\lambda/4$) 进入 Wollaston 棱镜(WP), 分成 s 光和 p 光, 并由 New Focus 1607-AC 差分探测器探测. 差分信号($D1-D2$) 经锁相放大器放大, 并由控制延迟装置的计算机同步采集得到 ZnTe 晶体中的 THz 辐射信号. 另外, 透过分束片 $BS2$ 的抽运光和探测光聚焦到 BBO 晶体上, 用来确定光路的零点位置(即抽运光和探测光光程差为零的位置).

3. 实验结果及讨论

3.1. ZnTe 晶体中 THz 辐射的产生和探测

在我们的实验中, 两束飞秒激光脉冲通过一个凸透镜 $L1$ 聚焦到 ZnTe 晶体上, 其中抽运光经由晶体中的光学整流产生 THz 辐射, 探测光则利用线性电光效应(Pockels 效应)探测 THz 辐射信号. 我们首先研究了不同入射激光脉冲功率下 ZnTe 晶体产生的 THz 辐射强度. 图 2 为入射激光功率从 10 mW 到 380 mW 范围内 ZnTe 晶体中产生的 THz 辐射场分布和峰值. 场分布宽度约为 0.2 ps . 由图 2(a) 可知, THz 辐射场峰值随着入射激光功率增加而递增. 图 2(b) 表明 THz 辐射强度线性正比于抽运激光功率, 同时表明测量得到的光电信号与 THz 辐射强度成线性关系, 从而可以利用其电光特性探测 THz 辐射场分布.

在理论上, 我们利用偏振态的归一化琼斯矩阵计算 THz 辐射场分布^[10]. 设入射光琼斯矢量为

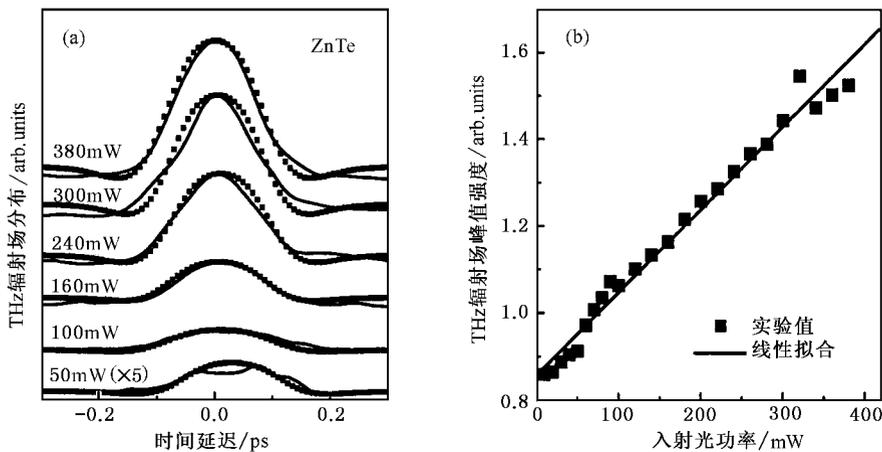


图 2 不同入射激光功率下 ZnTe 晶体产生的 THz 辐射场分布(a)和峰值强度(b)

$$I_0 = \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix}, \quad (1)$$

式中 θ 为探测光偏振方向与实验室坐标系 x 方向的

夹角(见图 3), 实验中 THz 电场方向与 x 轴平行, 传播方向沿 z 轴正方向. ZnTe 晶体的琼斯矩阵为

$$M(\text{ZnTe}) = \frac{1}{1 - i \tan(\Delta_0 + \Delta_1)} \begin{pmatrix} 1 - i \tan(\Delta_0 + \Delta_1) \cos(2\varphi) & -i \tan(\Delta_0 + \Delta_1) \sin(2\varphi) \\ -i \tan(\Delta_0 + \Delta_1) \sin(2\varphi) & 1 + i \tan(\Delta_0 + \Delta_1) \cos(2\varphi) \end{pmatrix}, \quad (2)$$

式中 φ 为 ZnTe $\langle 001 \rangle$ 轴与 x 轴的夹角, Δ_0 为 ZnTe 晶体初始相位, Δ_1 为 THz 电场在 ZnTe 晶体中产生的电光相位延迟^[11], 可表示为

$$\Delta_1 = (1 - R)B \int_T^{T+d\Delta n/c} E_{\text{THz}}(t) \times \exp[-\alpha(t - T)\Delta n] dt, \quad (3)$$

式中 $(1 - R)$ 为考虑了 THz 辐射在 ZnTe 晶体表面反射损失的附加因子, B 为 ZnTe 晶体 $\langle 110 \rangle$ 轴方向的一个表征因子, c 为真空中光速, Δn 为探测光和 THz 辐射在 ZnTe 晶体中因群速度不同引起的折射率之差, d 为晶体厚度, α 为晶体中 THz 场吸收系数, T 为 THz 脉冲和探测光脉冲相对延迟时间.

式中 Δ_2 为半波片的相位延迟, ϕ 为半波片快(慢)轴与 x 轴的夹角. 出射探测光的琼斯矢量为

$$I_{\text{field}} = M\left(\frac{\lambda}{4}\right) \cdot M(\text{ZnTe}) \cdot I_0. \quad (5)$$

经 Wollaston 棱镜取其强度分量 I_s 和 I_p , 在差分探测器上探测到的信号为两者的强度差 $I_s - I_p$, 其大小正比于 THz 辐射强度. 图 3(a) 中实线为不同入射激光脉冲功率下 ZnTe 晶体产生的 THz 辐射场分布, 点线是归一化到各自实验结果的理论计算值, 其中 $\theta = 90^\circ$, $\varphi = 10^\circ$, $\phi = 33^\circ$, $\Delta_0 = 5^\circ$, $\Delta_2 = 90^\circ$, $1 - R = 0.8$, $B = 16$, $\alpha = 2.5 \text{ cm}^{-1}$, $\Delta n = 3.17 - 2.85$ ^[12] 及 $d = 1.5 \text{ mm}$. 由图 3(a) 可知, 通过偏振光学系统中的琼斯矩阵计算得到的数据和实验曲线符合得很好(误差在 5% 以内, 由于锁模激光器在较低和较高功率下稳定性稍差, 使得这两端的误差稍大). 这进一步说明超短激光脉冲聚焦在 ZnTe 晶体上经由光学整流过程产生了 THz 辐射, 同时利用 ZnTe 晶体电光效应可探测到 THz 辐射. 图 4 是 ZnTe 晶体产生的 THz 辐射场分布经快速傅里叶变换(FFT)后得到的频谱. 我们发现, THz 辐射具有较宽的频率分布, 峰值对应的频率约为 0.3—0.5 THz, 频谱响应超过 4 THz, 半峰宽约为 2.4 THz. 以上观察到的较窄 THz 场分布和相应较宽的 THz 频谱充分说明了采用一块 ZnTe 晶体产生和探测 THz 辐射具有简便、可行的特点.

3.2. 影响 ZnTe 晶体 THz 辐射产生和探测的因素

除了入射激光脉冲功率之外, 进一步研究入射激光脉冲波长、脉冲宽度、晶体旋转以及偏振调制对 THz 辐射产生和探测的影响是有意义的. 我们测量了波长从 750 nm 到 850 nm 范围内的激光脉冲在 ZnTe 晶体中产生的 THz 辐射场分布, 发现 THz 辐射强度基本上没有变化. 产生这种现象的原因在于: 对于带隙为 2.26 eV 的 ZnTe 晶体^[13], 所用脉冲激光

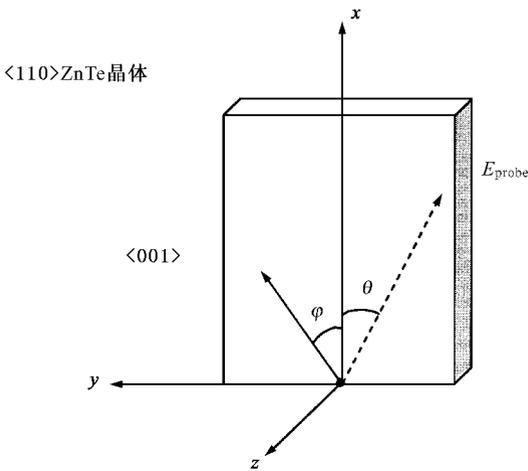


图 3 实验中所选取的坐标系 (x, y, z) 图中 x 方向为 THz 电场方向, z 方向为 THz 电场传播方向. φ 为 $\langle 110 \rangle$ ZnTe 晶体 $\langle 001 \rangle$ 轴与 x 轴夹角, θ 为探测光偏振方向与 x 方向的夹角

另外, 四分之一波片的琼斯矩阵为

$$M\left(\frac{\lambda}{4}\right) = \frac{1}{1 - i \tan(\Delta_2/2)} \begin{pmatrix} 1 - i \tan(\Delta_2/2) \cos(2\phi) & -i \tan(\Delta_2/2) \sin(2\phi) \\ -i \tan(\Delta_2/2) \sin(2\phi) & 1 + i \tan(\Delta_2/2) \cos(2\phi) \end{pmatrix}, \quad (4)$$

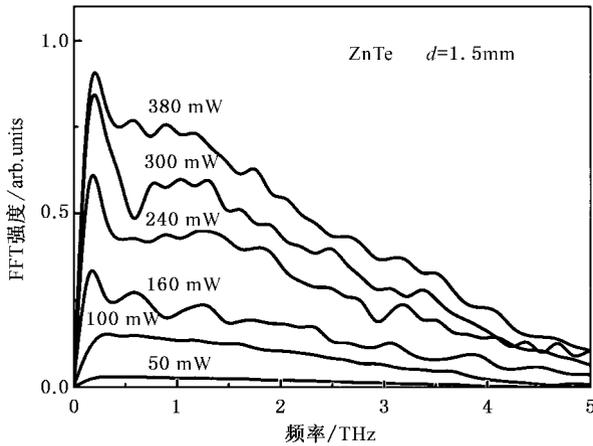


图4 ZnTe 晶体产生的 THz 辐射场 FFT 频谱

波长范围($750 \text{ nm} \leq \lambda \leq 850 \text{ nm}$)不在 ZnTe 的吸收区内^[14]. 在研究激光脉冲宽度影响的实验中,我们保持激光脉冲波长 800 nm 和功率 120 mW 不变,探测到的 THz 辐射场峰值随激光脉冲宽度($56\text{--}225 \text{ fs}$)的变化如图 5 所示. 当激光脉冲波长和功率保持不变时,脉冲能量不变,脉冲强度会随着脉冲宽度的增加而相应减小. 由于 ZnTe 晶体光学整流过程中的极化强度随着激发光强度呈线性变化,因此 THz 场峰值将随着脉冲宽度增加而减小. 远场条件下,THz 辐射场峰值与飞秒激光脉冲宽度 τ_p 的关系可表示为^[15]

$$E_{r, \text{far max}} \propto \frac{(1 + \sqrt{\epsilon})A}{4\pi\epsilon_0 c^2 \tau_p z}, \quad (6)$$

式中 A 为激光入射到 ZnTe 晶体的光斑面积,大小约为 0.01 cm^2 ; $\epsilon = 7.78$ ^[12] 为 ZnTe 晶体介电常数; ϵ_0 为真空介电常数; $z \approx 10 \text{ cm}$ 为远场距离. 图 5 中实线是根据 (6) 式计算所得的理论曲线,与实验结果符合较好. 可见,激光脉冲宽度的增大将导致 ZnTe 晶体产生的 THz 辐射场强度减弱.

晶体旋转和探测光偏振方向改变分别与 THz 辐射的产生和探测有着密切联系. 为了提高系统中 THz 辐射信噪比,实验中分别通过旋转 ZnTe 晶体 $\langle 001 \rangle$ 轴(改变 ZnTe 晶体 $\langle 001 \rangle$ 轴与 x 轴夹角 φ) 和改变探测光偏振方向(探测光偏振方向与 x 轴夹角 θ) 进一步研究 ZnTe 晶体中 THz 辐射场分布. 飞秒激光器产生一波长为 800 nm 、功率为 200 mW 的脉冲激光,正入射到 ZnTe 晶体上. 斩波器频率为 500 Hz ,锁相放大器的时间常数设置为 500 ms ,这两个参数以及延迟装置的步进速率对实验中 THz 辐射产生和探测影响不大^[15]. 对于旋转 ZnTe 晶体

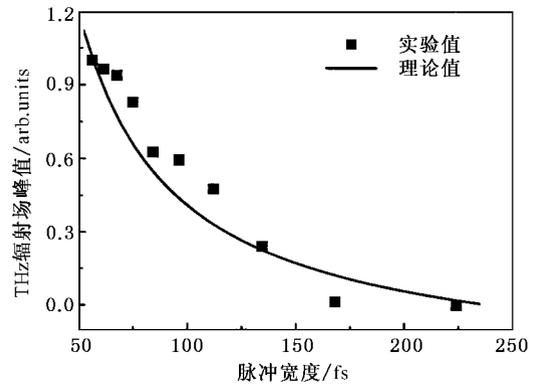


图5 不同飞秒激光脉冲宽度下 ZnTe 晶体产生的 THz 辐射强度. 实验数据用点表示,实线是理论计算结果

$\langle 001 \rangle$ 轴,设定 $\theta = 30^\circ$,晶体每转动 180° 就是一个周期. 对于改变探测光偏振方向,取晶体 $\langle 001 \rangle$ 轴最佳角度 $\varphi = 55^\circ$ ^[8],同样,偏振方向每改变 180° ,也是一个周期. 图 (a) 是 ZnTe 晶体 $\langle 001 \rangle$ 轴在不同方向下 THz 辐射强度,图 (b) 是通过旋转二分之一波片改变探测光偏振方向得到的 THz 辐射强度. 远场条件下,只旋转 ZnTe 晶体 $\langle 001 \rangle$ 轴时, ZnTe 晶体产生的 THz 辐射强度可表示为^[8]

$$E_{\text{THz}} \propto -2 \cos^2 \varphi + \sin^2 \varphi. \quad (7)$$

而固定晶体,改变探测光偏振方向时,探测到的 THz 辐射强度可表示为^[16]

$$E_{\text{THz}} \propto 7 + 4 \cos(2\theta) - 3 \cos(4\theta). \quad (8)$$

综合考虑 φ, θ 两个角度对探测 ZnTe 晶体产生的 THz 辐射的影响,得到 THz 电场表达式为

$$E_{\text{THz}} \propto a \cos^2 \varphi \cos(2\theta) + b \sin^2 \varphi \cos(4\theta) \quad (9)$$

式中 a, b 为调节参数. 图 6 中的实线是利用 (9) 式计算得到的拟合结果,选取 $a = 5.33, b = -12.0$. 拟合曲线和实验数据点符合较好. 因为晶体 $\langle 001 \rangle$ 轴与 THz 辐射电场方向平行时,差分探测器探测到的 THz 辐射信号为零^[17],所以晶体旋转 180° 时只出现一零值信号,如图 (a) 所示. ZnTe 晶体在电场作用下会表现出各向异性,当探测光偏振方向与 ZnTe 晶体感应折射率椭球主轴平行时,出射光的偏振特性没有改变,差分探测信号为零,因此探测光偏振方向每改变 90° ,探测信号也会出现一零值. 图 (b) 显示探测光偏振方向改变 90° 并未出现零值信号,可能是因为 ZnTe 晶体中存在着包括克尔效应在内的高阶非线性效应,其影响包含在 (9) 式 a, b 两个参数中,我们将在下一步工作中对此进行更深入的研究.

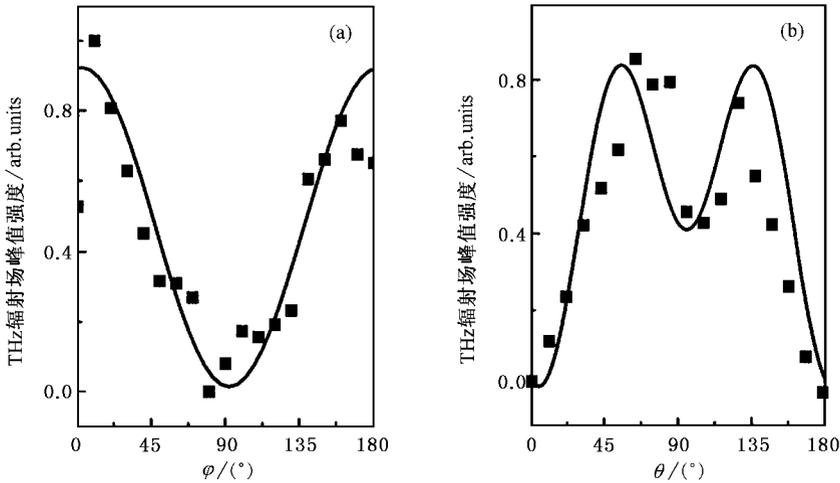


图6 旋转 ZnTe 晶体 $\langle 001 \rangle$ 轴 (a) 和改变探测光偏振方向 (b) 得到的 THz 辐射强度 实验数据用点表示, 实线是理论拟合结果

4. 结 论

通过对 $\langle 110 \rangle$ ZnTe 晶体中 THz 辐射产生和探测的研究, 证实了 THz 辐射是由超短激光脉冲在晶体中的光学整流过程产生, ZnTe 晶体存在着线性电光效应, 依此可探测 THz 辐射场分布. 并运用琼斯矩阵对实验结果进行了理论拟合. 观察到了较窄的

THz 场分布和相应较宽的 THz 频谱. 同时我们研究了激光脉冲波长、脉冲宽度和晶体旋转对 ZnTe 晶体中 THz 辐射产生的影响, 发现脉冲波长 (750—850 nm) 对 THz 辐射产生和探测基本上没有影响, THz 辐射场强度随着入射激光脉冲宽度 (56—225 fs) 增加而减弱. 晶体 $\langle 001 \rangle$ 轴与 THz 辐射电场方向垂直时 THz 辐射强度最大. 并从理论和实验上分析了偏振调制在 THz 辐射探测中的作用.

- [1] Diels J C 1995 *Ultrashort Laser Pulse Phenomena* (New York : Academic) Chap 11
- [2] Kleinman D A , Auston D H 1984 *IEEE J. Quantum Electron.* **8** 964
- [3] Auston D H , Cheung K P , Valdmanis J A *et al* 1984 *Phys. Rev. Lett.* **53** 1555
- [4] Carrig T J , Rodriguez G , Clement T S *et al* 1995 *Appl. Phys. Lett.* **66** 121
- [5] Carrig T J , Rodriguez G , Clement T S *et al* 1995 *Appl. Phys. Lett.* **66** 10
- [6] Sinykov A M , Hayden L M 2002 *Opt. Lett.* **27** 55
- [7] Wu S , Shen W Z , Ogawa H *et al* 2003 *Chin. Phys.* **12** 1026
- [8] Chen Q , Zhang X C 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 3435
- [9] Zhang X C , Jin Y , Ma X F 1992 *Appl. Phys. Lett.* **61** 2764
- [10] Lu Y X , Li B D 1989 *Matrix Optics* (Dalian : Dalian University of Technology Press) Chap 5 (in Chinese) [卢亚雄、吕百达 1989 矩

阵光学(大连:大连理工大学出版社)第5章]

- [11] Jepsen P U , Winnerwischer C , Schall M *et al* 1996 *Phys. Rev. E* **53** R3052
- [12] Winnerwischer C , Jepsen P U , Schall M *et al* 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 3069
- [13] Shen X C 2002 *Semiconductor Spectroscopy and Optical Properties* (Beijing : Science Press) Chap 3 (in Chinese) [沈学础 2002 半导体光谱和光学性质(北京:科学出版社)第3章]
- [14] Shi W , Ding Y J , Mu X D 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 3749
- [15] Darrow J T , Zhang X C , Auston D H *et al* 1992 *IEEE J. Quantum Electron.* **28** 1607
- [16] Bonvalet A , Joffre M , Martin J L *et al* 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 2907
- [17] Planken P C M , Nienhys H K , Bakker H J *et al* 2001 *J. Opt. Soc. Am. B* **8** 313

Generation of terahertz radiation via optical rectification and electro-optic detection in ZnTe crystals^{*}

Liu Rui Gu Chun-Ming He Li-Rong Wu Sen Shen Wen-Zhong[†]

(*Laboratory of Condensed Matter Spectroscopy and Opto-Electronic Physics, Department of Physics, Shanghai Jiaotong University, Shanghai 200030, China*)

Ogawa Hiroshi Guo Qi-Xin

(*Department of Electrical and Electronic Engineering, Faculty of Science and Engineering, Saga University, Saga 840-8502, Japan*)

(Received 6 June 2003; revised manuscript received 3 November 2003)

Abstract

We report on the generation of terahertz (THz) radiation via optical rectification and the detection using electro-optic sampling in $\langle 110 \rangle$ ZnTe crystal by the pump-probe technique. The pulsewidth of the observed THz radiation is about 0.2 ps, resulting in the wideband THz spectra with a spectral sensitivity beyond 4 THz and the full width at half-maximum of about 2.4 THz. The Jones matrix method has been employed successfully for the calculation of the THz radiation. We study the effects of the optical pulse wavelength, pulsewidth and the ZnTe crystal $\langle 001 \rangle$ axis on the generation of THz radiation in the ZnTe crystal. The dependence of the polarization-modulation on the THz detection has also been investigated both experimentally and theoretically by changing the polarization of the probe light.

Keywords : THz radiation, optical rectification, electro-optic sampling, ZnTe

PACC : 7340E, 7820J

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation for Outstanding Young Researchers of China (Grant No. 10125416).

[†] Corresponding author. E-mail : wzshen@sjtu.edu.cn