

飞秒激光作用 ZnSe 晶体产生和探测 THz 辐射的实验

吴晓君 黄 敏 陈晓妹 赵福利 贾天卿 王 钢[†] 许宁生

(中山大学光电材料与技术国家重点实验室, 广州 510275)

摘要: 实验研究了 ZnSe 单晶的光学整流 THz 产生,借助电光取样技术得到 THz 脉冲的时域波形和 FFT 频谱分布,观察到约 113fs 的 THz 辐射场分布,及相应约 5.8THz 的频谱分布,辐射峰位于 3THz 左右.对比研究了不同表面的 ZnSe 晶体的 THz 辐射峰值强度随激发光功率的变化,通过轻微烧蚀模型定性解释了高激发功率下 THz 信号的饱和机制.

关键词: THz; 飞秒激光; ZnSe; 光学整流; 电光取样

EEACC: 2520

中图分类号: TN304. 2

文献标识码: A

文章编号: 0253-4177(2006)08-1412-05

1 引言

目前,T 射线成像^[1]、THz 时域光谱^[2]和泵浦-探测动力学分析^[3]等研究都源于相干 THz 辐射具有信噪比好、分辨率高等优点.这些技术所用 THz 源主要是基于超快近红外光聚焦在非线性光学材料上通过光学整流或光电导效应产生宽带 THz 辐射.前者是一种非线性光学效应,利用脉冲激光和非线性介质的相互作用产生随时间变化的低频电极化场辐射电磁波;光电导效应是指介质中的光生载流子在内部或外加电场下作变速运动而辐射电磁波.光整流发射的 THz 辐射能量直接由激光脉冲耦合而来,转换效率依赖于材料的非线性系数和相位匹配条件,而光电导效应辐射 THz 能量来源于外加偏置电压.虽然通过调节外加电场可获得能量较高的 THz 电磁辐射,但是利用光整流产生 THz 辐射可以获得时域很窄的宽带 THz 脉冲.最近,Nahata 等人^[4]利用此方法获得 180fs 的脉冲,Bonvalet 等人^[5]得到大于 50THz 的频谱分布.利用非线性光学晶体如 LiNbO₃,LiTiO₃,ZnTe,CdTe,InP,GaAs 和有机 DAST 等产生 THz 脉冲已有很多报道^[6~8].最近研究表明,由于 ZnSe 材料具有强场承受能力(100kV/cm,GaAs:10kV/cm)^[9]和高的载流子迁移率(600cm²/(V·s),宝石:10cm²/(V·s))^[10],且生长工艺(CVD)成熟,虽然受到光电导 THz 辐射源的青睐^[11],但直接利用 ZnSe 晶体的光整流产生 THz 电磁辐射的报道相对较少.

电光取样技术已成为探测和表征 THz 辐射的有力工具^[12~14],可以直接探测超快现象中的电场振幅和相位信息,但要求非线性材料具有高电光响应、低群速度失配和低 THz 辐射吸收.满足以上要求的材料,如 GaP 和 ZnTe 等的研究已经非常多^[15~18],探测带宽可扩展到中红外领域.虽然 ZnSe 晶体的电光系数 γ_{41} (2pm/V) 只有 ZnTe (4pm/V) 的一半,但 ZnSe 的横光学声子振动频率 ν_{TO} (6.15THz) 比 ZnTe (5.31THz) 高很多,用 ZnSe 作为电光探测材料扩展了探测带宽. Holzman 等报道了 PVD 生长的单晶 ZnSe 和 CVD 生长的多晶 ZnSe 用于自由空间 THz 辐射的探测,发现 ZnSe 呈现出良好的宽带探测能力,为集成 THz 电光取样探测器和发射器的研制开辟了道路^[19,20].

本研究利用抽运-探测技术,在一块 ZnSe 晶体上通过光整流和线性电光效应研究了 ZnSe 体单晶的 THz 产生和探测.与自由空间电光取样 THz 系统不同,飞秒激光在 ZnSe 晶体中通过光学整流产生的 THz 场在自身晶体中传播,由于其频率(10¹²Hz)相对于光场(10¹⁵Hz)是极低的,可将 THz 场等效为外加直流电场通过电光效应引起晶体的折射率椭球发生变化,调制探测光的偏振态.这种用同一块晶体实现 THz 产生和探测的方法,基本不受环境的干扰(比如空气中水分子对 THz 信号的吸收),无需在真空室内进行;产生 THz 脉冲不会因外加光学元件(如抛物面镜等)的影响而使脉冲展宽;且实时的电光取样克服了自由空间发射的 THz 波背向辐射和材料界面而引起的损失,可探测到材料的真实 THz 辐射

[†] 通信作者. Email:stswangg@zsu.edu.cn

强度和波形,对材料的性质研究有重要意义.我们利用上述方法观察到很窄的 THz 脉冲(113fs),对应很宽的频谱(6THz).在不同激发功率照射下,THz 峰值强度线性增加,而在另一块喷碳的 ZnSe 晶体中观察到 THz 辐射饱和,并定性解释了以上现象.

2 实验

图 1 为飞秒激光照射 ZnSe 单晶产生和探测 THz 电磁辐射的实验测试系统. Ti:sapphire (Spectral Physics) 输出中心波长在 800nm 的线偏振光,脉宽为 100fs,重复频率 82MHz. 激光脉冲经过分束镜 BS 分为两束,一束激光脉冲(抽运光)经锁相放大器控制的斩波器和反射镜 M4 和 M5 后入射到透

镜 L1,分别聚焦到直径为 1.5cm,厚 2mm,双面抛光的 111 ZnSe 电光晶体上.另一束激光脉冲(探测光)经过半波片和透镜 L1 聚焦到 ZnSe 晶体上同一位置.图中 M7 为可移动反射镜,当插入光路时,用 BBO 晶体的自相关信号确定光路零点.当移开 BBO 晶体时,抽运光和探测光同时作用在 ZnSe 晶体上,探测光经反射镜 M8 反射进入四分之一波片,再经渥拉斯顿棱镜分为 s 偏振和 p 偏振,分别进入两个相同的硅光电管.通过差分放大,时间延迟装置改变探测脉冲与 THz 脉冲光程差,把 THz 电磁场辐射在电光晶体上引起的折射率变化转化为探测光强的变化,同步取样采集 ZnSe 晶体中 THz 辐射场的电场强度,输入锁相放大器,由计算机处理可得到 THz 辐射脉冲的时域波形.

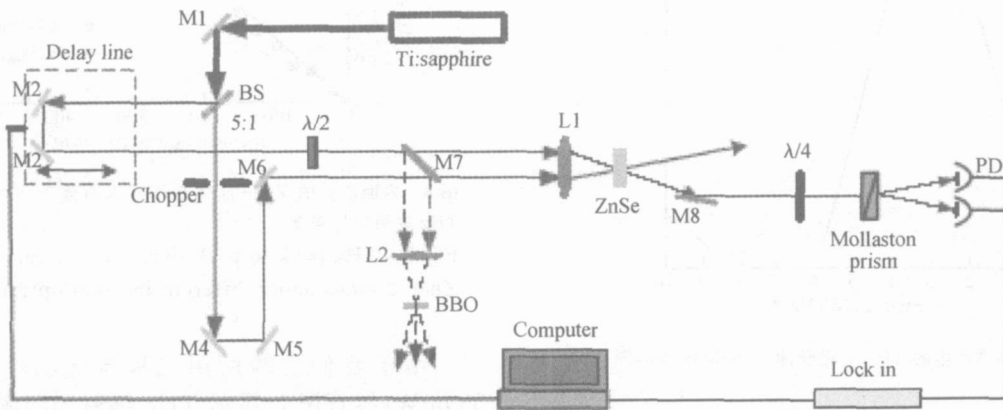


图 1 ZnSe 晶体产生和探测局域 THz 电磁辐射的实验测试系统

Fig. 1 Experiment setup of THz radiation from ZnSe crystal

3 结果与讨论

本实验对两块 ZnSe 晶体进行了测量,一块表面清洁,另一块表面喷了很薄一层碳粉.在没有 THz 脉冲信号时,光电二极管(PD)探测到两偏振光电流差经锁相放大器输出为零,当两束飞秒激光脉冲同时聚焦到 ZnSe 晶体上,抽运光经光整流产生 THz 脉冲无需克服晶体界面损耗和反射镜的色散而直接在材料中传播引起晶体折射率的变化,通过实时光电取样而探测到超快响应脉冲.利用相同方法在 ZnTe 晶体中的研究已有报道^[21],观察到约 200fs 的 THz 场分布及相应较宽(相应超过 4THz,半峰宽约为 2.4THz)的 THz 频谱.我们实验观察到的 THz 时域波形如图 2(a)所示,图 2(b)为 FFT 频谱分布.从图 2 可知,ZnSe 晶体辐射的 THz 场分布宽度约为 113fs,FFT 频谱图显示,THz 电磁波的辐射峰值位于 3THz 左右,频谱宽度接近 6THz.这一方面由于我们实验所用 ZnSe 晶体(2mm)比

ZnTe 晶体(1.5mm)厚度大,在忽略色散情况下,获得了更大的相干长度;另外也可能因为 ZnSe 晶体的极化响应时间更快,且实验中相位匹配条件满足得非常之好,使得辐射带宽变大.从图 2(b)可以看出,实验上利用 ZnSe 晶体得到的 THz 辐射频谱分布探测极限约为 5.8THz,这个数值非常接近 ZnSe 晶体的横光学声子振动频率 ν_{TO} (6.15THz).我们认为由于横光学声子的共振吸收,使得 THz 宽带探测受到限制.针对多种不同横光学声子振动频率的材料的研究^[14],发现光电取样技术所能探测的高频宽度受电光晶体的横光学声子振动频率限制,这也给出了一种探测晶体声子振动频率的方法.因此,ZnSe 晶体($\nu_{TO} = 6.15\text{THz}$)用于宽频 THz 探测方面优于 ZnTe 晶体($\nu_{TO} = 5.31\text{THz}$).最近 THz 波段时域光谱测量 ZnSe 体单晶在 0.5~3.0THz 范围内的折射率和吸收系数,发现 ZnSe 体单晶在 THz 波段范围内有多声子吸收效应^[22],为进一步研究 ZnSe 材料在 THz 波段的性质提供了参考.

图 3 为入射光功率从 25 到 500mW 范围内

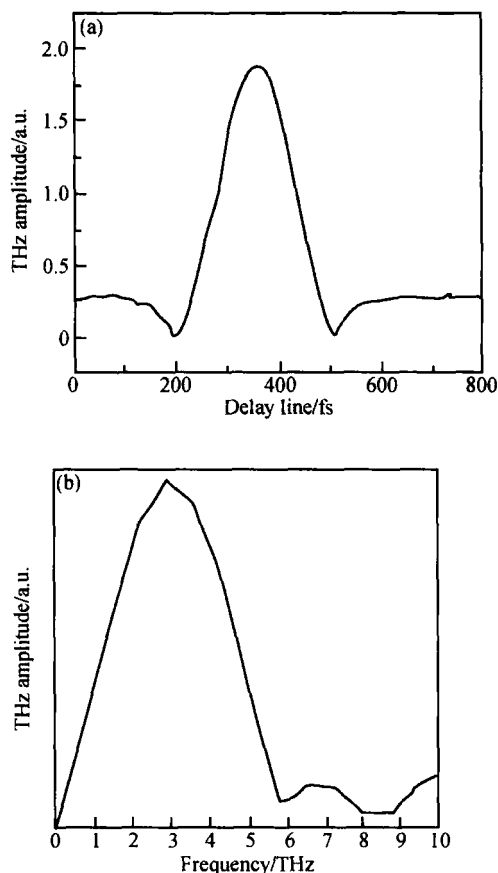


图2 ZnSe 晶体产生的 THz 电磁脉冲 (a) 时域波形图; (b) FFT 频谱图

Fig. 2 THz waveform from ZnSe crystal (a) Time-domain THz waveform; (b) THz frequency spectrum

ZnSe 晶体中产生的峰值信号强度. 可见, THz 辐射峰值随激发光功率增加而增大, 线性正比于激发光功率, 符合光整流产生 THz 辐射的原理,

$$E_{\text{THz}}(t) = \frac{\partial^2 P^{(2)}(t)}{\partial t^2} I_{\text{pump}} \quad (1)$$

同时也满足线性电光探测 THz 辐射分布的规律^[23],

$$\delta\phi_{\text{THz}}(T) = \frac{\omega}{c} n_0^3 \gamma_{41} E_{\text{THz}}(T) dz = C_{\text{ZnSe}} E_{\text{THz}}(T) dz \quad (2)$$

其中 $\Delta\phi_{\text{THz}}(T)$ 为探测光相位延迟; T 为 THz 脉冲和探测光脉冲的相对延迟时间; γ_{41} 为电光系数; ω , n_0 为探测光的频率和折射率; c 为光速; C_{ZnSe} 为常数. 将上式对整个晶体长度 L 积分^[24],

$$\Delta\phi_{\text{THz}}(T) = (1 - R) C_{\text{ZnSe}} \int_0^L E_{\text{THz}} \left(\frac{z}{c} \Delta n + T \right) e^{-\alpha z} dz \quad (3)$$

式中 R 为反射损失; Δn 为探测光和 THz 辐射在 ZnSe 晶体中因群速度不同引起的折射率差; L 为晶体厚度; α 为晶体的 THz 场吸收系数. 如果吸收系

数与频率无关, 则 THz 脉冲可直接由测量的相位变化量 $\Delta\phi_{\text{THz}}(T)$ 的微分求得,

$$E_{\text{THz}}(T) = \frac{d}{dT} \Delta\phi_{\text{THz}}(T) - \frac{\alpha c}{\Delta n} \Delta\phi_{\text{THz}}(T) \quad (4)$$

由于 α 系数很小, 第二项略去,

$$I_{\text{signal}} \frac{\Delta\phi_{\text{THz}}(T)}{C_{\text{ZnSe}} L} \approx E_{\text{THz}}(T) \quad (5)$$

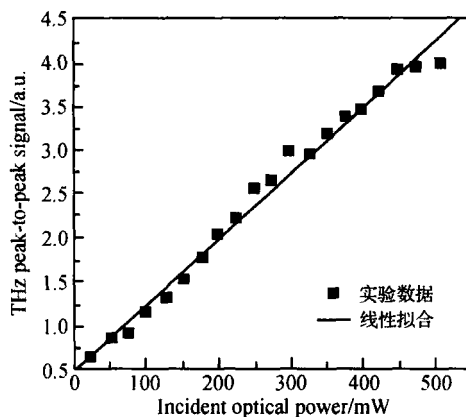


图3 表面清洁的 ZnSe 晶体在不同入射激光功率下产生的 THz 峰值信号强度

Fig. 3 THz peak-to-peak signal from clean surface of ZnSe crystals under different incident optical powers

由于我们实验所用飞秒激光功率只能接近 500mW, 尽管图 3 显示 THz 辐射场随激发光功率增加略出现饱和趋势, 但目前不能从实验上进一步获得这块未被烧蚀 ZnSe 材料的实验数据. 在强激发光照射下, ZnSe 晶体高阶非线性效应的存在可能是 THz 信号饱和的一个原因, 例如 ZnSe 晶体的多光子吸收而发射极强蓝色荧光, 将部分能量转化为荧光发射, 从而导致耦合到 THz 电磁波的能量减少; 另外, ZnSe 晶体在大功率激光作用下, 晶体表面会出现纳米光栅结构^[25], 这种激光诱导周期性纳米结构可能通过辐射表面电磁波的形式而提高对激光能量的吸收^[26], 将部分激光能够耦合到表面电磁波发射. 激光诱导周期性纳米结构对 THz 电磁波产生和探测的影响将在我们下一步工作中得到进一步研究.

在另一块喷碳的 ZnSe 晶体上, 观察到 THz 辐射场减弱且出现慢饱和, 见图 4. 经分析发现, 喷碳的 ZnSe 晶体在大功率激发光照射下, 其表面很容易被烧蚀. 同样的慢饱和效应在 DAST 发射器中也观察到^[27], 作者认为这可能是高阶非线性效应引起的整流效率降低. 通过降低功率再返回测量时, 发现饱和效应的不可逆, 对比大功率的高阶非线性效应和低功率极化的可逆性, 我们认为这是由于 ZnSe 晶体表面已被烧蚀破坏而造成的. 这种烧蚀机制, 一方

面激光诱导周期性纳米结构对激光能量的吸收可能导致 THz 信号饱和;另外表面烧蚀使得晶体的厚度变薄,激发光与晶体作用的有效长度变短,THz 辐射强度减小.由于振荡级 800nm 激光的单脉冲能量较弱,破坏晶体表面尚需一定时间,在这个过程中,探测到信号的逐渐饱和,而非突然减小.轻微烧蚀破坏了晶体表面的对称性,在一定深度产生的无序结构影响了晶体的极化,使得晶体在外加 THz 场作用下极化率的改变降低,从而使得晶体表面的电光系数减小,探测到信号的逐渐饱和.

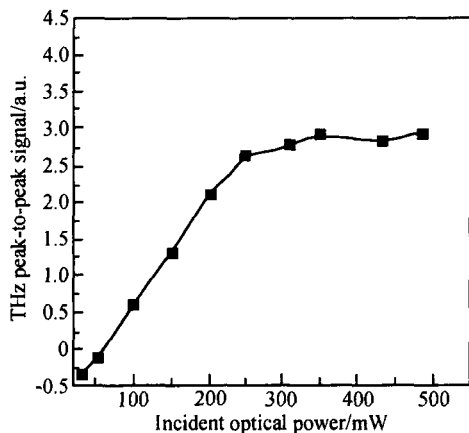


图 4 喷碳表面的 ZnSe 晶体在不同入射激光功率下产生的 THz 峰值信号强度

Fig. 4 THz peak-to-peak signal from ZnSe crystals sprinkled by carbon under different incident optical powers

4 总结

通过研究 111 ZnSe 体单晶中 THz 辐射场的产生和探测,得到 THz 辐射强度与激发光功率的关系.证实了 ZnSe 晶体中 THz 辐射是由光整流产生,且可通过电光取样技术直接探测 THz 场分布.飞秒激光作用 ZnSe 体单晶辐射的 THz 电磁波的峰值位于 3 THz 附近,频宽接近 6 THz,脉冲宽度约为 113 fs.在比较研究两块不同表面的 ZnSe 晶体时发现,THz 辐射强度在喷碳晶体中存在饱和效应,这是由于轻微烧蚀破坏了晶体表面结构而引起的.对于飞秒激光烧蚀 ZnSe 晶体表面诱导的周期性纳米结构对 THz 电磁辐射的影响,将在下一步工作中展开.

参考文献

[1] Mittleman D M, Jacobsen R H, Nuss M C. T-ray imaging. *IEEE J Sel Topics Quantum Electron*, 1996, 2: 679
 [2] Han P Y, Tani M, Usami M, et al. A direct comparison be-

tween terahertz time-domain spectroscopy and far-infrared Fourier transform spectroscopy. *J Appl Phys*, 2001, 89: 2357
 [3] Schall M, Uhd Jepsen P. Photoexcited GaAs surfaces studied by transient terahertz time-domain spectroscopy. *Opt Lett*, 2000, 25: 13
 [4] Nahata A. Nonlinear optical generation and detection of ultra-short electrical pulses in transmission lines. *Opt Lett*, 2001, 26: 385
 [5] Bonvalet A, Joffre M, Martin J L, et al. Generation of ultra-broadband femtosecond pulses in the mid-infrared by optical rectification of 15 fs light pulses at 100 MHz repetition rate. *Appl Phys Lett*, 1995, 67: 2907
 [6] Hu B B, Zhang X C, Auston D H. Free-space radiation from electro-optic crystals. *Appl Phys Lett*, 1989, 56: 506
 [7] Zhang X C, Hu B B, Darrow J T. Generation of femtosecond electromagnetic pulses from semiconductor surfaces. *Appl Phys Lett*, 1989, 56: 1011
 [8] Li M, Sun F G, Wagoner G A, et al. Measurement and analysis of terahertz radiation from bulk semiconductors. *Appl Phys Lett*, 1995, 67: 25
 [9] Elezabi A Y, Houtman H, Meyer J. Time-resolved impact ionization in ZnSe high-voltage switches. *IEEE Trans Plasma Sci*, 1994, 22: 1043
 [10] Yoneda H, Ueda K, Aikawa Y, et al. Photoconductive properties of chemical vapor deposited diamond switch under high electric field strength. *Appl Phys Lett*, 1995, 66: 460
 [11] Holzman J F, Elezabi A Y. Two-photon photoconductive terahertz generation in ZnSe. *Appl Phys Lett*, 2003, 83: 2967
 [12] Wu Q, Zhang X C. Free-space electro-optic sampling of terahertz beams. *Appl Phys Lett*, 1995, 67: 3523
 [13] Wu Q, Zhang X C. Ultrafast electro-optic field sensors. *Appl Phys Lett*, 1996, 68: 1604
 [14] Wu Q, Litz M, Zhang X C. Broadband detection capability of ZnTe electro-optic field detectors. *Appl Phys Lett*, 1996, 68: 2924
 [15] Wu Q, Zhang X C. Free-space electro-optics sampling of mid-infrared pulses. *Appl Phys Lett*, 1997, 71: 1285
 [16] Wu Q, Zhang X C. 7 terahertz broadband GaP electro-optic sensor. *Appl Phys Lett*, 1997, 70: 1784
 [17] Huber R, Brodschelm A, Tauser F, et al. Huber, Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 THz. *Appl Phys Lett*, 2000, 76: 3191
 [18] Leitenstorfer A, Hunsche S, Shah J. Detectors and sources for ultrabroadband electro-optic sampling: experiment and theory. *Appl Phys Lett*, 1999, 74: 1516
 [19] Holzman J F, Vermeulen F E, Irvine S E, et al. Free-space detection of terahertz radiation using crystalline and polycrystalline ZnSe electro-optic sensors. *Appl Phys Lett*, 2002, 81: 2294
 [20] Hawkins Gary J. Spectral characterization of infrared optical materials and filters. Doctor's Dissertation, University of Reading, UK, 1998
 [21] Liu Rui, Gu Chunming, He Lirong, et al. Generation of terahertz radiation via optical rectification and electro-optic detection in ZnTe crystals. *Acta Physica Sinica*, 2004, 53(4): 1217 (in Chinese) [刘锐, 顾春明, 贺莉蓉, 等. ZnTe 晶体中光学整流产生的 THz 辐射及其电光探测研究. *物理学报*, 2004, 53(4): 1217]
 [22] Xu Xinlong, Wang Xiumin, Li Fuli, et al. Measurement and analysis of optical constants of bulk ZnSe in THz region. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2004, 24(10): 1153 (in Chinese)

- nese)[徐新龙,王秀敏,李福利,等. ZnSe 体单晶 THz 波段时域光谱测量及分析. 光谱学与光谱分析,2004,24(10):1153]
- [23] Winnewisser C,Uhd Jepsen P,Schall M,et al. Electro-optic detection of THz radiation in LiTaO₃,LiNbO₃ and ZnTe. Appl Phys Lett,1997,70(23):3069
- [24] Uhd Jepsen P,Winnewisser C,Schall M,et al. Detection of THz pulses by phase retardation in lithium tantalite. Phys Rev E,1996,53:3052
- [25] Jia T Q,Chen H X,Huang M,et al. Formation of nanogratings on the surface of a ZnSe crystal irradiated by femtosecond laser pulses. Phys Rev B,2005,72:125429
- [26] Ursu I,Mihailescu I N,Prokhorov A M,et al. On the mechanism of surface compound formation by powerful microsecond pulsed TEA CO₂ laser irradiation in technical nitrogen. J Phys D:Appl Phys,1985,18:2547
- [27] Carrig T J,Rodriguez G,Clement T S,et al. Scaling of terahertz radiation via optical rectification in electro-optic crystals. Appl Phys Lett,1995,66(2):121

THz-Wave Generation and Detection from ZnSe Crystal Induced by a Femtosecond Laser

Wu Xiaojun, Huang Min, Chen Xiaoshu, Zhao Fuli, Jia Tianqing, Wang Gang[†], and Xu Ningsheng

(State Key Laboratory of Optoelectronic Materials and Technologies, Zhongshan University, Guangzhou 510275, China)

Abstract: We experimentally study THz generation and detection in 111 ZnSe samples using optical rectification and electro-optic sampling. A THz radiation pulse with a width of 113fs (full width at half maximum), results in a wideband THz spectrum near 5.8THz with a peak signal at 3THz. We also examine the dependence of the peak THz electric field on optical pump power. The generated peak electric field increase linearly with increasing optical pump power in the ZnSe sample with a clean surface, while for the sample with a carbon-sprinkled surface, the peak field exhibits a slow saturation behavior at powers greater than 250mW. It seems that the damages surface decreases the optical rectification efficiency.

Key words: THz; femtosecond laser; ZnSe; optical rectification; electro-optic sampling

EEACC: 2520

Article ID: 0253-4177(2006)08-1412-05

[†] Corresponding author. Email: stswangg@zsu.edu.cn