

氧化铝晶体的太赫兹光谱特性研究

李高芳^{1,2}, 许艳霞¹, 胡涛², 聂小博¹, 卞正兰¹, 黄志明^{2*}, 褚君浩²

(1. 上海电力大学 电子与信息工程学院, 上海 200090;

2. 中国科学院上海技术物理研究所 红外物理国家重点实验室, 上海 200083)

摘要: 利用太赫兹时域光谱 (THz-TDS) 技术研究了氧化铝 (Al_2O_3) 在宽带太赫兹波范围 (0.2~3.0 THz) 内的光谱特性。改变晶体光轴与太赫兹脉冲偏振方向间的夹角 (方位角), 得到了 Al_2O_3 晶体在不同方位角下的太赫兹时域谱, 计算了 Al_2O_3 晶体 o 光和 e 光的折射率和吸收系数, 并画出了 Al_2O_3 晶体在太赫兹波段的折射率椭圆图。结果表明, Al_2O_3 在太赫兹频段具有较大的双折射率和较低的吸收系数, 双折射率高达 0.36, 吸收系数低于 5 cm^{-1} 。基于 Al_2O_3 晶体的双折射特性实现了对 THz 脉冲的相位和振幅的调制。 Al_2O_3 晶体可以作为 THz 脉冲的“整形器”, 为太赫兹波在超宽带、超高速通信系统的应用提供重要参考。

关键词: 氧化铝; 太赫兹时域光谱; 双折射; 脉冲整形

中图分类号: O433.1 文献标识码: A

Properties of Terahertz spectral in aluminium oxide crystal

LI Gao-Fang^{1,2}, XU Yan-Xia¹, HU Tao², NIE Xiao-Bo¹, BIAN Zheng-Lan¹, HUANG Zhi-Ming^{2*},
CHU Jun-Hao²

(1. School of Electronic & Information Engineering, Shanghai University of Electric Power, Shanghai 200090, China;

2. State Key Laboratory of Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China)

Abstract: The spectral characteristics of aluminium oxide (Al_2O_3) in broadband terahertz wave range (0.2~3.0 THz) were investigated by using terahertz time-domain spectroscopy (THz-TDS). The terahertz time-domain spectra of Al_2O_3 crystal at different azimuthal angles is obtained by changing the angle between the crystal optical axis and the polarization direction of THz pulse. The refractive index and absorption coefficient of o- and e-waves are calculated, and the index ellipse of Al_2O_3 in THz band is drawn. The experimental results indicate that Al_2O_3 has large birefringence and low absorption coefficient in THz, with a birefringence as high as 0.36 and an absorption coefficient lower than 5 cm^{-1} . The phase and amplitude of THz pulse can be modulated based on the birefringence of the crystal. Al_2O_3 crystal can be used as "shaper" of THz pulse, which provides important reference for the application of terahertz wave in ultra-wideband and ultra-high speed communication systems.

Key words: aluminium oxide, Terahertz time-domain spectroscopy, birefringence, pulse shaping

PACS: 78.20. -e, 78.20. Ci, 78.20. Fm, 78.47. J-

引言

太赫兹波 (THz) 介于远红外和微波之间, 通常是指频率范围约为 0.1~10 THz 的电磁波。由于最初相当长时间内缺乏有效的产生和探测技术, THz

波段曾被称为“THz 空隙”^[1]。上世纪八十年代后期, 超快激光的出现为产生和探测 THz 脉冲提供了有效手段, 因此 THz 波的相关理论和技术引起了研究者的广泛关注, 主要包括 THz 发射^[2-4], THz 光谱

收稿日期: 2020-08-21, 修回日期: 2020-10-21

Received date: 2020-08-21, Revised date: 2020-10-21

基金项目: 国家杰出青年科学基金 (61625505); 国家自然科学基金 (11647023); 上海市自然科学基金 (17ZR1411500)

Foundation items: Supported by National Science Fund for Distinguished Young Scholars (61625505); National Natural Science Foundation of China (11647023); Natural Science Foundation of Shanghai (17ZR1411500)

作者简介 (Biography): 李高芳 (1983-), 女, 河南许昌人, 讲师, 博士, 主要研究领域为太赫兹光谱技术及应用. E-mail: ligaofang@shiep.edu.cn

* 通讯作者 (Corresponding author): E-mail: zmhuang@mail.sitp.ac.cn

成像和分析等研究方向^[5-8]。THz波在物体成像、无损检测、无线通信等多个领域拥有广泛的应用^[9-12]。利用THz时域光谱(THz-TDS)技术研究太赫兹波段材料的光学特性是研究领域的热点。近年来,利用THz-TDS系统研究了物质的性质,包括有机物^[13-14]、液晶和非线性光学晶体等^[15-22],已取得显著的成果。相比其他光谱技术,太赫兹脉冲拥有皮秒级脉冲宽度,因此在时间分辨的光谱测量中具有广泛应用,能够检测样品的动态特性。

氧化铝是一类无机化合物,是化学式为 Al_2O_3 的两性氧化物,具有优异的化学、物理和光学性能。 Al_2O_3 晶体在高温下具有高机械强度、良好的热性能和优异的光学透明性^[23]。此外,它是一种电绝缘体,但相对于陶瓷材料具有高导热性。作为一种优秀的多功能材料, Al_2O_3 晶体广泛应用于耐高温红外窗口材料及多种外延薄膜的基片材料等。近年来,研究者们主要关注于 Al_2O_3 复合材料以及在工业上的应用^[24-27],目前对其在远红外区域特性的研究较少。

本文利用THz-TDS研究了氧化铝(Al_2O_3)晶体在太赫兹频段的光谱特性。水平偏振的太赫兹脉冲垂直入射样品,通过旋转样品,改变样品方位角,在0.2~3.0 THz频率范围内研究了 Al_2O_3 晶体的太赫兹光谱特性。实验结果表明, Al_2O_3 晶体在太赫兹频段存在双折射现象,基于晶体的双折射特性可以实现对THz脉冲的振幅和相位的调制。 Al_2O_3 晶体在THz范围内具有较大的双折射率和较低的吸收系数,因此可以应用于太赫兹器件的基础材料。

1 实验装置

实验所用仪器为英国剑桥TeraView公司生产的型号为TeraPulse 4000的太赫兹脉冲光谱仪。利用透射型THz-TDS测量了 Al_2O_3 晶体在THz频率下的光谱性质。设备光源采用中心波长为780 nm的飞秒光纤激光,THz产生器和探测器为砷化镓光电导开关。太赫兹光谱的有效频谱宽度为0.06~4.5 THz,信噪比最高达70 dB。

透射型THz-TDS系统的原理图如图1所示。主要由超短脉冲激光器、太赫兹产生装置、太赫兹探测装置和时间延迟系统等组成。超短脉冲激光器产生的激光进入系统后被分光镜分为泵浦光和探测光,泵浦光入射到太赫兹辐射源产生太赫兹波。太赫兹波经离轴抛物面镜和透镜后聚焦到被测样品上,透过样品后载有样品信息的太赫兹波与探测

光同时聚焦到太赫兹探测装置上,并驱动探测装置进行测量。利用时间延迟系统调整泵浦光和探测光之间的时间延迟,最终获得太赫兹脉冲完整的时域波形。

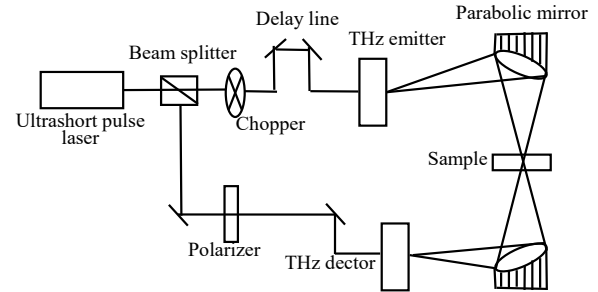


图1 透射型THz-TDS装置原理示意图

Fig. 1 Schematic diagram of transmission-type THz-TDS system

2 数据处理

从电磁场理论出发,透过样品前的太赫兹电场强度 E_i 和透过样品后含有样品信息的电场强度 E_s 的比值可表示为:

$$\left(\frac{E_s}{E_i}\right) = T(n) \exp\left(-\frac{\alpha d}{2} + \frac{j\omega d}{c}\right) \quad (1)$$

其中 d 为样品厚度, ω 为辐射角频率, c 为真空中的光速, $T(n)$ 为样品表面的菲涅耳反射损耗。

因此,通过测量电场的比值,可以直接得到样品的频率相关折射率 n 和吸收系数 α 。

在我们的测量中,样品的电场可表示为:

$$E_s = A_{SO} e^{j\phi_{SO}} \quad (2)$$

参考(背景)的电场可表示为:

$$E_r = A_{RO} e^{j\phi_{RO}} \quad (3)$$

其中 A_{SO} 和 A_{RO} 是电场的振幅, ϕ_{SO} 和 ϕ_{RO} 是太赫兹脉冲的相位。

将式(2)、(3)带入式(1)中得到:

$$\frac{A_{SO}}{A_{RO}} e^{j(\phi_{SO} - \phi_{RO})} = T(n) e^{\left(-\frac{\alpha d}{2} + \frac{j\omega d}{c}\right)} \quad (4)$$

吸收系数可以表示为:

$$\alpha d = -2 \ln \left[\frac{\left(\frac{A_{SO}}{A_{RO}}\right)}{T(n)} \right] \quad (5)$$

折射率可表示为:

$$nd = \frac{c}{\omega} (\phi_{SO} - \phi_{RO}) \quad (6)$$

3 结果与讨论

实验中所研究的样品是x切向 Al_2O_3 单晶,样品厚度为0.51 mm,光轴方向与z轴重合。THz脉冲水平偏振且垂直入射样品光轴所在表面,THz波的偏振方向与晶体光轴的夹角我们用方位角 φ 表示,如图2所示。通过旋转样品,改变方位角大小,测得样品不同方位角的太赫兹时域光谱如图3所示。由图3可知, Al_2O_3 的太赫兹时域谱的振幅和相位均随方位角的变化而变化。从图3(a)可以看出,当方位角从 0° 增加到 90° , Al_2O_3 晶体的太赫兹主脉冲逐渐向左移动,振幅先减小后增大。 90° 时太赫兹时域谱的振幅和 0° 时大致相等,但两种方位角下太赫兹脉冲存在较大的相位差。在方位角 30° 和 60° 时出现了两个太赫兹脉冲,并随着方位角的改变两个太赫兹脉冲的振幅发生变化。从图3(b)可以看出,方位角从 90° 增加到 180° 时, Al_2O_3 晶体的太赫兹主脉冲逐渐向右移动,振幅先减小后增大, 180° 时太赫兹时域谱的振幅和 90° 时大致相等,但二者存在较大的相位差。在方位角 120° 和 150° 时出现了两个太赫兹脉冲,并随着方位角的改变两个太赫兹脉冲的振幅发生变化。从图3可以看出, Al_2O_3 晶体在太赫兹波段表现出明显的双折射现象。当入射的THz波偏振方向与晶体光轴的夹角为 0° 和 180° 时,THz脉冲偏振方向与晶体光轴平行,只存在o光,没有发生脉冲分离,不发生双折射现象;当方位角为 30° 、 60° 、 120° 和 150° 时,o光和e光同时存在,两个THz脉冲的分离和振幅调制比较明显,可以观察到明显的双折射现象;当方位角为 90° 时,THz脉冲偏振方向与晶体光轴垂直,只存在e光,没有发生脉冲分离,不发生双折射现象。且方位角为 90° 时的太赫兹脉冲相位超前于方位角为 0° 时的太赫兹脉冲,可以看出o光的传播速度小于e光,进一步说明 Al_2O_3 晶体在所研究频段表现为负单轴晶体。

选取 0° 和 90° 这两种方位角下的太赫兹时域光谱,经快速傅立叶变换后得到太赫兹频谱如图4(a)所示。从图4(a)可知,方位角为 90° 时其频谱振幅在0.59~1.62 THz和2.14~3 THz范围内略大于方位角为 0° 时的频谱振幅。通过公式(5)、(6)可以计算出 Al_2O_3 晶体o光和e光的吸收系数及折射率。 Al_2O_3 在太赫兹波段o光和e光的吸收系数如图4(b)所示。在0.2~3.0 THz频率范围内,在 0° 和 90° 方位角下 Al_2O_3 的吸收系数均小于 5 cm^{-1} ,随着频率增大吸收系数总体呈缓慢增长趋势,说明 Al_2O_3 晶体对o光

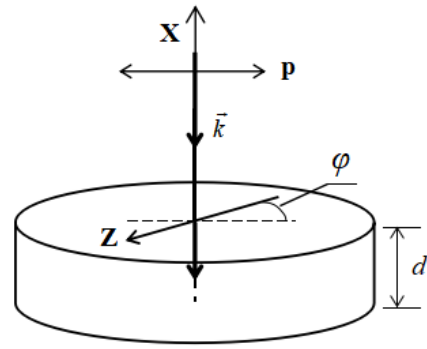
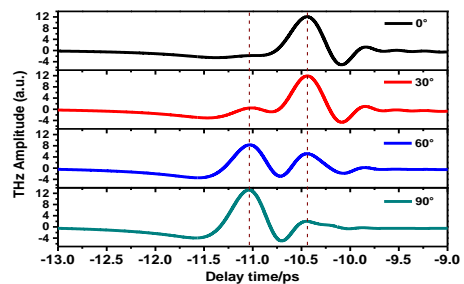
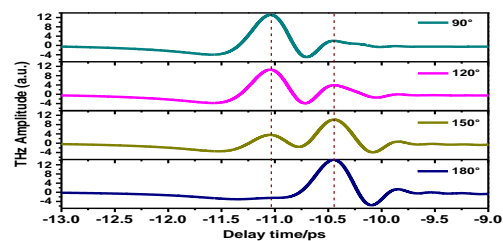


图2 入射THz波偏振方向与晶体光轴夹角(方位角) φ 的示意图

Fig. 2 Schematic diagram of the angle (azimuth) φ between polarization of incident THz wave and optical axis of crystal



(a)



(b)

图3 (a)方位角分别为 0° 、 30° 、 60° 和 90° 时样品的太赫兹时域谱;(b)方位角分别为 90° 、 120° 、 150° 和 180° 时样品的太赫兹时域谱

Fig. 3 (a) Terahertz time-domain spectra of the sample with azimuthal angles of 0° , 30° , 60° and 90° respectively; (b) Terahertz time-domain spectra of the sample with azimuthal angles of 90° , 120° , 150° and 180° respectively

和e光的吸收均比较小。 Al_2O_3 在太赫兹波段o光和e光的折射率如图4(c)所示,可以明显观察到方位角为 0° 时 Al_2O_3 的折射率整体大于方位角为 90° 时 Al_2O_3 的折射率,即o光折射率大于e光折射率,且在两种方位角下,随着频率的增加,折射率均呈现增大的现象。方位角为 0° 时,THz波偏振方向平行于

光轴,得到o光的折射率 n_o ,介于3.4~3.5之间;方位角为 90° 时,THz波偏振方向垂直于光轴得到e光折射率 n_e ,在3.1~3.15间变化。我们定义o光和e光最大折射率之差为双折射率(Δn),即 $\Delta n=n_o-n_e$ 约为0.36, Al_2O_3 晶体具有较大的双折射率。

Al_2O_3 为负单轴晶体,折射率 $n_x=n_y=n_o$, $n_z=n_e$, n_o 和 n_e 分别为晶体的寻常光(o光)和非寻常光(e光)的折射率。它属于三方晶系,点群为 $\bar{3}2/m$,空间群为 $R\bar{3}C$,三次对称轴存在于主轴z方向, Al_2O_3 的折射率椭球是旋转椭球,可表示为

$$\frac{x^2 + y^2}{n_o^2} + \frac{z^2}{n_e^2} = 1 \quad , \quad (7)$$

在可见光区(589 nm),氧化铝晶体的o光和e光

的折射率分别为1.770和1.762,折射率之差为 $\Delta n=n_o-n_e=0.008$ 。然而在远红外区($300 \mu\text{m}$,即1 THz), Al_2O_3 晶体的o光和e光的折射率分别为3.45和3.09,折射率之差为 $\Delta n=n_o-n_e=0.36$,这表明 Al_2O_3 晶体在THz波段的双折射现象比在可见光波段更明显。 Al_2O_3 在可见光和THz波段都是单轴晶体,折射率椭球可以简化为折射率椭圆。图5为 Al_2O_3 晶体在589 nm和 $300 \mu\text{m}$ 波长下的折射率椭圆图,直观描述了 Al_2O_3 具有较大的双折射率。

o光和e光的较大折射率之差意味着 Al_2O_3 可用于制造太赫兹脉冲分离器或太赫兹脉冲整形器。假设入射THz脉冲的振幅为 $E_{in}(t) = \int_0^\infty E_{in}(\omega) d\omega$,o

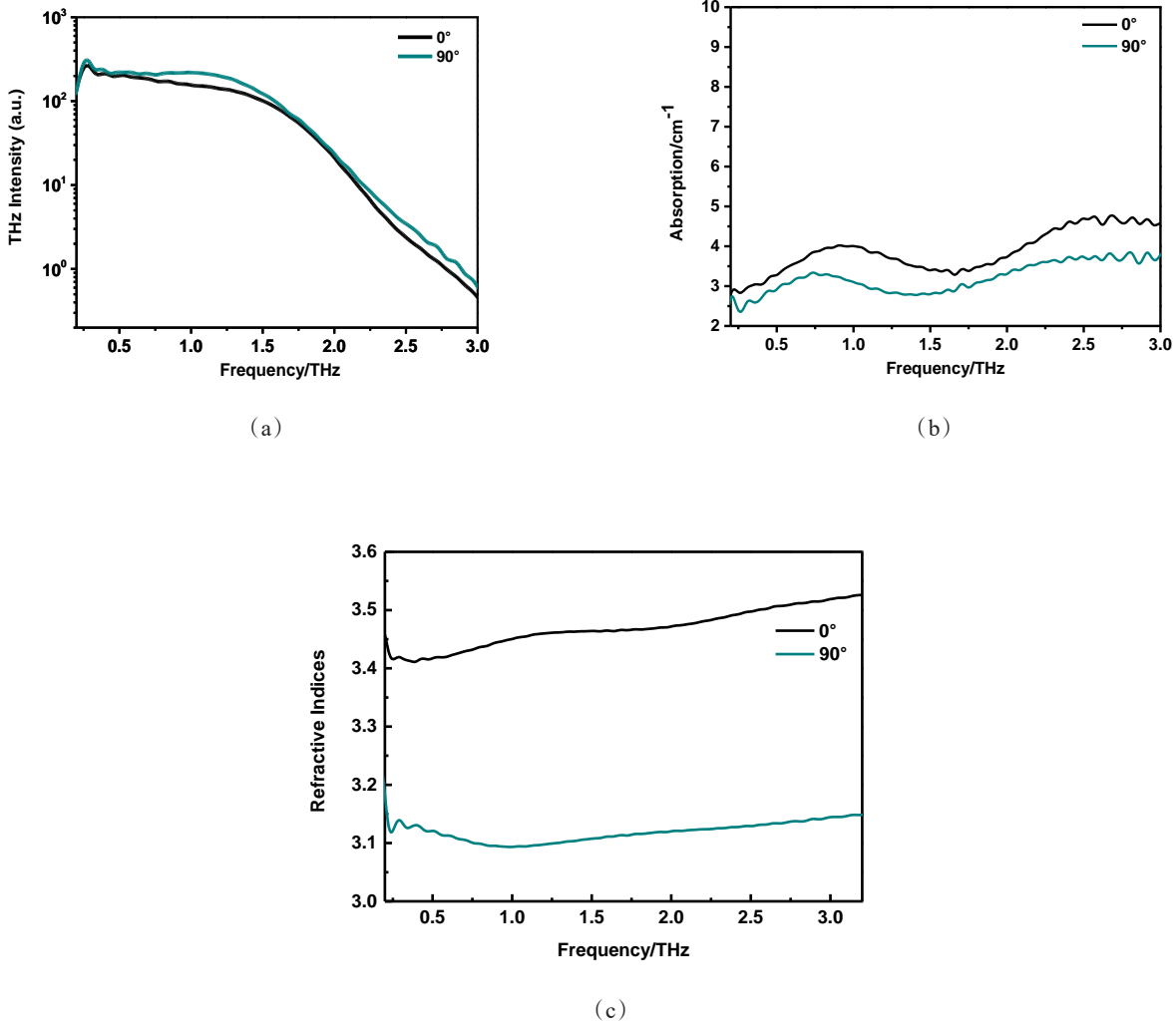


图4 (a) Al_2O_3 样品的太赫兹频谱;(b)样品的太赫兹波段吸收系数;(c)样品的太赫兹波段折射率

Fig. 4 (a) Terahertz frequency-domain spectra of Al_2O_3 sample; (b) Absorption coefficient of the sample in terahertz band; (c) Refractive index of the sample in terahertz band

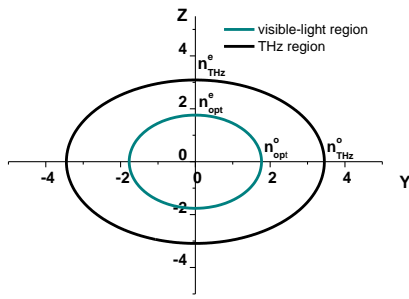


图5 氧化铝晶体在可见光波段和THz波段下的折射率椭圆

Fig. 5 Index ellipsoids of Al_2O_3 crystal in visible and THz bands

光和e光的折射率和吸收系数分别为 $n_o(\omega)$, $\alpha_o(\omega)$ 和 $n_e(\omega)$, $\alpha_e(\omega)$, 晶体光轴相对于入射THz脉冲偏振方向的夹角为 φ 。经过 Al_2O_3 晶体后,透射o光和e光的能量比为^[28]:

$$\frac{P_{out e}(t)}{P_{out o}(t)} = \frac{\int_0^{\infty} \left[\frac{4n_e(\omega)}{(n_e(\omega) + 1)^2} E_{in}(\omega) \cos\phi \right]^2 \exp(-\alpha_e d) d\omega}{\int_0^{\infty} \left[\frac{4n_o(\omega)}{(n_o(\omega) + 1)^2} E_{in}(\omega) \sin\phi \right]^2 \exp(-\alpha_o d) d\omega} \quad (8)$$

因此,通过改变方位角 φ 可以实现两个子脉冲的相对振幅调制。如图3所示,通过改变 Al_2O_3 的光轴与THz脉冲偏振方向的夹角,可以调节THz波的振幅。当选择合适的方位角时,发射的THz脉冲可以分成两个子脉冲(o光和e光),并控制两个子脉冲的相对大小。另一方面,当晶体厚度 d 满足 $d > \frac{c\tau}{\Delta n}$ (c 和 τ 分别是真空中的光速和THz脉冲持续时间),当入射THz脉冲的偏振方向不平行或垂直于晶体光轴时,通过晶体后THz脉冲分成的两个子脉冲可以在时域内完全分离。我们可以通过改变方位角和晶体厚度来连续调制THz脉冲的振幅和相位,即 Al_2O_3 晶体的双折射可以引起太赫兹“脉冲整形”。

4 结论

综上所述,本文利用透射型THz-TDS系统研究了0.2~3.0 THz频率范围内氧化铝晶体的光谱特性。太赫兹脉冲垂直入射样品,通过旋转样品改变

THz波偏振方向与晶体光轴的夹角,在 $0^\circ \sim 180^\circ$ 方位角变化范围内,利用太赫兹脉冲测量了 Al_2O_3 晶体的时域光谱,并计算了o光和e光的折射率和吸收系数。实验结果表明, Al_2O_3 晶体在太赫兹频段存在双折射现象,基于晶体的双折射特性实现了THz脉冲的振幅和相位调制。在整个频率范围内, Al_2O_3 晶体具有较大的双折射率及低吸收特性。通过太赫兹时域光谱分析了样品在太赫兹波段范围内的光谱特性,从而为氧化铝性质的研究及其在太赫兹波段的应用提供参考。

References

- [1] TONG Xing-Cun. Functional Metamaterials and Metadevices [M]. Switzerland: Springer, Cham, 2017.
- [2] Kim K-Y, Glowina J H, Taylor A J, et al. Terahertz emission from ultrafast ionizing air in symmetry-broken laser fields [J]. *Optics express*, 2007, **15**(8): 4577-4584.
- [3] SHEN Jian, FAN Xin, CHEN Zhi-Yuan, et al. Damping modulated terahertz emission of ferromagnetic films excited by ultrafast laser pulses [J]. *Applied Physics Letters*, 2012, **101**(7): 072401.
- [4] Takano K, Asai M, Kato K, et al. Terahertz emission from gold nanorods irradiated by ultrashort laser pulses of different wavelengths [J]. *Scientific Reports*, 2019, **9**(1): 3280.
- [5] Trofimov V A, Varentsova S A, CHEN Jian. Method of THz spectrum dynamics analysis for identification of compound medium [J]. *Proceedings of SPIE*, 2010, **7671**(11): 76710G.
- [6] Artemchuk P Y, Sulymenko O R, Louis S, et al. Terahertz frequency spectrum analysis with a nanoscale antiferromagnetic tunnel junction [J]. *Journal of Applied Physics*, 2019, **127**(6): 063905.
- [7] Federici J F, Schulkin B, HUANG Feng, et al. THz imaging and sensing for security applications - Explosives, weapons and drugs [J]. *Semiconductor Science and Technology*, 2005, **20**(7): S266.
- [8] WANG Yu-ye, CHEN Lin-Yu, XU De-Gang, et al. Advances in terahertz three-dimensional imaging techniques [J]. *Chinese Optics*, 2019, **12**(1): 1-18.
- [9] Stübling E-M, Rehn A, Siebrecht T, et al. Application of a robotic THz imaging system for sub-surface analysis of ancient human remains [J]. *Scientific Reports*, 2019, **9**(1): 3390.
- [10] LIU Yu, LIU Hao, TANG Mei-Qiong. The medical application of terahertz technology in non-invasive detection of cells and tissues: opportunities and challenges [J]. *RSC Advances*, 2019, **9**(17): 9354-9363.
- [11] William Tribe, David Newnham, Philip Taday, et al. Hidden object detection: security applications of terahertz technology [J]. *Proceedings of SPIE- The International Society for Optical*, 2004, **5354**: 168-176.
- [12] YANG Hong-Ru, LI Hong-Guang. Research progress on terahertz communication technology [J]. *Journal of Applied Optics*, 2018, **39**(1): 12-21.
- [13] ZHENG Zhuan-Ping, GONG Jia-Min. Investigation on

- THz spectrum of orotic acid by THz-TDS [J]. *Journal of Terahertz ence and Electronic Information*, 2019, **17**(4): 563-566.
- [14] XIE Ming-Zhen, JIANG Li-Yun, CHE Tuan-Jie, *et al.* Application of terahertz technology in detecting protein organic compounds [J]. *Journal of Lanzhou University (Medical Sciences)*, (谢明真, 蒋丽云, 车团结, 等. 太赫兹技术在检测蛋白质类有机化合物的应用进展. 兰州大学学报(医学版)), 2018, **44**(6): 70-75.
- [15] LIU Qi-Fu, LUO Dan, LI Shao-Xian, *et al.* The birefringence and extinction coefficient of positive and negative liquid crystals in the terahertz range [J]. *Liquid Crystals*, 2016, **43**(6): 796-802.
- [16] LIU Yan, FAN Fei, CHEN Sai, *et al.* Terahertz Optical Properties of Nematic Liquid Crystals Depended on Different External Fields [J]. *Acta Optica Sinica*, 2016, **36**(2): 0226001.
- [17] WANG Shan-Peng, LIANG Qi-Jun, TAO Xu-Tang, *et al.* Optical properties and birefringence in LiInS_2 in the terahertz frequency range [J]. *Optical Materials Express*, 2014, **4**(4): 575-586.
- [18] Nikolaev N A, Andreev Y M, Kononova N G, *et al.* Temperature dependence of terahertz optical properties of LBO and perspectives of applications in down-converters [J]. *Journal of Physics Conference Series*, 2018, **951**(1): 012005.
- [19] Antsygin V D, Mamrashev A, Nikolaev N A. Terahertz birefringence of potassium niobate crystals [J]. *Results in Physics*, 2018, **8**: 598-599.
- [20] SONG Ke-Chao, TIAN Zhen, ZHANG Wei-Li, *et al.* Temperature-dependent birefringence of lithium triborate, LBO in the THz regime [J]. *Scientific Reports*, 2017, **7**(1): 8122.
- [21] CAI Hong-Lei, HUANG Hao-Liang, HUANG Qiu-Ping, *et al.* Optical tuning of dielectric properties of $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$ superlattices in the terahertz range [J]. *Optics Express*, 2018, **26**(6): 7842-7851.
- [22] REN Guan-Hua, ZHAO Hong-Wei, ZHANG Jian-Bing, *et al.* Terahertz dielectric properties of single-crystal MgO [J]. *Infrared and Laser Engineering*, (任冠华, 赵红卫, 张建兵, 等. 氧化镁单晶在太赫兹波段的介电特性. 红外与激光工程), 2017, **46**(8): 0825001.
- [23] Kim Y, Yi M, Kim B G, *et al.* Investigation of THz birefringence measurement and calculation in Al_2O_3 and LiNbO_3 [J]. *Applied Optics*, 2011, **50**(18): 2906-2910.
- [24] Miller F P, Vandome A F, McBrewster J. Aluminium Oxide [M]. Saarbrücken: Alphascript Publishing, 2010.
- [25] WANG Jia-Tai, WANG Er-Jiao, ZHANG Fu-Bo, *et al.* Research progress of alumina preparation technology [J]. *Inorganic Chemicals Industry*, (王甲泰, 王尔皎, 张福波, 等. 氧化铝制备技术的研究进展. 无机盐工业), 2017, **49**(10): 12-15.
- [26] SUN Ke-Ning, MA Xi-Xi, HOU Rui-Jun, *et al.* Research progress in modification of alumina support and its application [J]. *The Chinese Journal of Process Engineering*, 2019, **19**(3): 465-472.
- [27] Suthar K, Singh Y, Surana A R, *et al.* Experimental evaluation of the friction and wear of jojoba oil with aluminium oxide (Al_2O_3) nanoparticles as an additive [J]. *Materials Today: Proceedings*, 2019, **25**(4): 699-703.
- [28] LI Dong, MA Guo-Hong, GE Jin, *et al.* Terahertz pulse shaping via birefringence in lithium niobate crystal [J]. *Applied Physics B*, 2009, **94**(4): 623-628.