

太赫兹波段金属线栅的紫外光控特性研究

张弘润, 季鸿雨, 赵 萍, 林高照, 王福合, 张 波*, 沈京玲*

首都师范大学物理系, 太赫兹光电子学教育部重点实验室, 北京 100048

摘 要 基于氧化铜纳米薄膜及金属线栅的特性, 利用紫外激光诱导以金属线栅为衬底的氧化铜纳米结构, 研究其对于太赫兹偏振透射的调制特性。实验中在金属线栅上滴入溶于乙醇的氧化铜溶液, 并使溶液恰好浸润在金属线栅缝隙中, 同时将加热台的温度调至 340 °C, 对金属线栅中的氧化铜进行热退火。结果表明, 氧化铜-金属线栅线长方向与太赫兹电场偏振方向垂直时, 在低强度紫外光的照射下, 该样品对太赫兹的透射强度有较为明显的衰减, 当紫外光功率密度为 $7 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时, 样品对太赫兹的调制深度可达 71%; 当氧化铜-金属线栅线长方向与太赫兹电场偏振方向平行时, 紫外光激发下的样品对太赫兹的调制效果明显减弱, 当紫外光功率密度为 $7 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时, 调制深度约为 20%。氧化铜纳米薄膜中存在的氧空位, 使该材料对紫外光具有特殊响应。在无紫外光照射下, 样品环境中的氧气分子被吸附到氧化铜表面, 由于化学反应生成 O^{2-} 离子态。当用光子能量大于氧化铜禁带宽度的紫外光激发样品时, 在氧化铜表面激发出电子空穴对, 空穴会被氧化铜表面的 O^{2-} 离子态和缺陷态束缚, 从而释放电子到导带, 增强了样品的电导率。在太赫兹波段内, 透过氧化铜样品的太赫兹强度与氧化铜电导率有很好的相关性。金属线栅利用金属表面可存在的自由电子的振荡, 使电场方向与线栅方向平行的太赫兹偏振光激发电子沿线栅方向振荡, 当电子与金属晶格中的原子碰撞时, 此偏振光发生衰减并伴随辐射; 而电场方向与线栅方向垂直的太赫兹偏振光, 由于周期性结构的限制, 无法激发自由电子振荡, 主要表现出透射特性。结合氧化铜的表面缺陷特性, 紫外光可实现作为氧化铜-金属线栅结构的光控偏振开关作用, 氧化铜-金属线栅结构偏振器能很好地应用于太赫兹波段的光控偏振调制。

关键词 金属线栅; 氧化铜; 太赫兹时域光谱技术; 偏振

中图分类号: O433.4 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2019)07-2040-06

引 言

太赫兹(Terahertz, THz)波频率范围介于微波和红外线之间, 一般是指频率在 0.1~10 THz($1 \text{ THz} = 10^{12} \text{ Hz}$)范围内的电磁辐射。THz 波频率很高(波长比微波小 1 000 倍以上), 导致其空间分辨率很高; THz 脉冲很短(飞秒级), 因而 THz 波又具有很高的时间分辨率。THz 时域光谱技术与成像技术构成 THz 应用的两大关键技术^[1-2]。太赫兹波段的偏振元件作为光学系统的核心器件, 对于太赫兹光谱与成像的发展具有重要意义。不断向太赫兹波段拓展的亚波长金属线栅型偏振片, 具有良好的偏振特性, 并且体积小、易集成、能量利用率高, 可获得高透过率, 高消光比(在太赫兹波段, 消光比偏低), 有效入射角较大且损伤阈值高, 广泛应用于

偏振 LED、偏振控制等领域^[3-4]。还有一些半导体材料、滤波器、超材料等也常被用作太赫兹波的调制器件; 光学激励、磁性变化以及升温等方式都可作为太赫兹波的调制手段^[5-15]。

金属线栅利用金属表面可存在的自由电子的振荡, 使电场方向与线栅方向平行的太赫兹偏振光激发电子沿线栅方向振荡, 当电子与金属晶格中的原子碰撞时, 此偏振光发生衰减并伴随辐射; 而电场方向与线栅方向垂直的太赫兹偏振光, 由于金属线栅周期性结构的限制, 无法激发自由电子振荡, 主要表现出透射特性^[16]。近年来, 一些半导体材料因其具有较宽的禁带宽度、较小的电阻率和较高的催化活性, 特别是其对紫外光较强的光响应特性引起广泛关注^[17-19]。本文基于氧化铜对于紫外光的光响应特性^[20], 制备成以金属线栅为衬底的氧化铜纳米结构偏振器。利用太赫兹时域光谱技

收稿日期: 2018-05-24, 修订日期: 2018-09-30

基金项目: 国家自然科学基金项目(61505125)资助

作者简介: 张弘润, 女, 1997 年生, 首都师范大学物理系本科生 e-mail: 15611239548@163.com

* 通讯联系人 e-mail: bzhang@cnu.edu.cn; sjl-phy@cnu.edu.cn

术,在紫外光诱导下,研究氧化铜-金属线栅对太赫兹波透射的偏振特性影响,最终实现可用紫外光控作为金属线栅这类偏振器的偏振开关。

1 实验部分

1.1 仪器与试剂

首先使用精度为 1 mg 的电子天平,按照 1 : 4 的质量比,分别称取氧化铜纳米颗粒与无水乙醇;将氧化铜纳米颗粒溶解在无水乙醇中,配置成溶液;再将所配置的溶液进行超声,得到无水乙醇溶解的氧化铜纳米溶液。然后将金属线栅粘连在石英基底上,金属线栅的相关参数请参见图 1, d 为线栅周期, w 为金属线宽。在金属线栅上滴入预制的氧化铜乙醇溶液,并使溶液恰好浸润在金属线栅的缝隙中;最后,将加热台的温度调至 340 °C,对金属线栅缝隙中的氧化铜进行热退火,得到以金属线栅为衬底的氧化铜纳米结构即为实验样品,如图 1 插图所示。

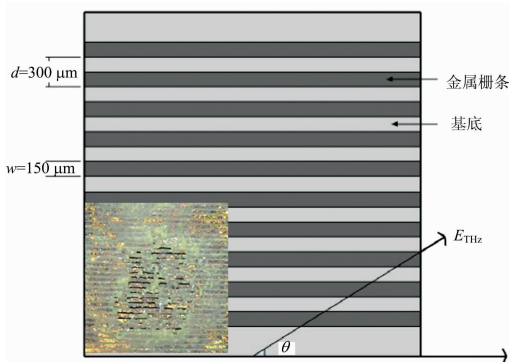


图 1 金属线栅结构示意图, 插图为氧化铜-金属线栅结构实物图

Fig. 1 Diagram of the metal wire grid. The inset is photograph of an In_2O_3 /metal wire grid structure

1.2 实验操作

太赫兹时域光谱系统 (THz-TDS) 采用光导天线作为 THz 波发射源,利用 ZnTe 晶体作为探测器,采用电光取样方法测量 THz 波信号。实验用光纤飞秒激光器,中心波长 800 nm,重复频率 75 MHz,脉宽 120 fs,最大输出功率为 120 mW。光导天线使用 Zomega 公司生产的低温砷化镓 (Lt-GaAs) 基底天线,两平行电极间距为 50 μm ,可产生有效频段范围为 0.2~2.6 THz 的太赫兹脉冲。锁相放大器产生标准 TTL 方波信号,通过放大得到偏压信号并作用在光导天线的两极上,偏压信号峰峰值为 75 V,频率为 8.337 kHz。利用太赫兹时域光谱系统对样品进行测试,实验样品放置在 THz 焦点处。THz 脉冲电场可使电光晶体的折射率椭球发生变化,线偏振的探测光经过折射率椭球变化的 ZnTe 晶体后,偏振方向发生的改变,与 THz 电场的振幅变化成正比,从而可间接探测出 THz 脉冲电场的变化情况。线偏振态改变后的探测脉冲经 $\lambda/4$ 波片和沃拉斯通棱镜,分成偏振方向相互垂直的两束光,照射到双眼光电探头上,由锁相放大器

获取电流信号,最后经过计算机进行相应的数据采集。实验中利用电动平移台作可变延迟线,改变 THz 脉冲与探测脉冲的时间延迟,扫描得到太赫兹电场的时域波形。将样品放入测试系统中利用 THz-TDS 测试。测试在室温下进行,充入干燥空气使样品腔湿度控制在 5% 以下。

首先,分别检测了太赫兹脉冲对于金属线栅和以石英为衬底的氧化铜薄膜的透射特性。金属线栅的结构参数如图 1 所示, θ 为太赫兹电场的偏振方向与金属线栅线长方向的夹角。本实验主要研究 θ 为 0° 和 90° 这两种相互垂直的偏振模式下太赫兹波的透射特性。将样品固定在样品架上,并使太赫兹波垂直入射到样品上,利用太赫兹时域光谱系统,如图 2 所示,进行扫描测量。氧化铜薄膜的制作,需把氧化铜纳米颗粒溶于无水乙醇制备成氧化铜溶液,旋涂在石英基底上,在 340 °C 温度下,退火 1 h。本实验所用的外激励光是波长为 355 nm 的连续紫外光,用其照射样品,使其能完全与太赫兹波光斑重合。然后,以同样方法研究以金属线栅为衬底的氧化铜纳米结构的太赫兹透射特性。

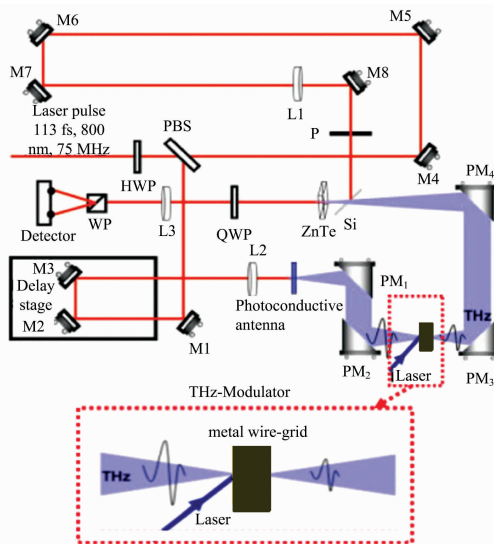


图 2 太赫兹波时域光谱系统

Fig. 2 Schematic of terahertz time-domain spectroscopy (THz-TDS) system

2 结果与讨论

通过实验,我们得到金属线栅的线长方向与太赫兹电场偏振方向夹角分别为 0° 和 90° 时的太赫兹透射时域光谱,夹角为 0° 时,我们称为 $T_{//}$; 夹角为 90° 时,我们称为 T_{\perp} ,如图 3(a) 所示。 T_{\perp} 模式下,时域谱的太赫兹透射振幅可达 40%; $T_{//}$ 模式下,太赫兹透射振幅低于 13%。图 3(b) 显示的是这两种偏振状态下的太赫兹透射频谱。在 T_{\perp} 模式下,太赫兹透射振幅约 61%; 而在 $T_{//}$ 模式下,太赫兹的透射振幅仅为 9%,在此模式下,太赫兹偏振光电场方向与线栅方向平行,能够激发电子沿线栅方向振荡,由于电子与金属晶格中的原子碰撞,偏振光会发生衰减,伴随辐射,所以 $T_{//}$ 模式下的太赫兹透射振幅会明显小于 T_{\perp} 模式下的太赫兹透射振幅。

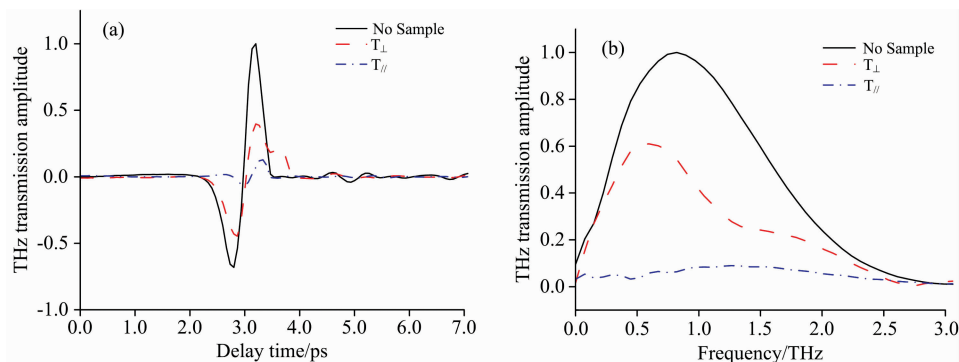


图 3 (a) 金属线栅 T_{\parallel} 与 T_{\perp} 模式的透射时域谱图; (b) 金属线栅 T_{\parallel} 与 T_{\perp} 模式的透射频域谱图
Fig. 3 (a) Time-domain spectroscopy of metal wire grid in T_{\parallel} and T_{\perp} status; (b) THz transmission amplitude spectra of metal wire grid in T_{\parallel} and T_{\perp} status

图 4(a)展示了氧化铟-石英结构在不同紫外光强照射下的太赫兹时域光谱,当紫外光功率密度为 $4 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时,太赫兹的透射振幅衰减为 54%,随紫外光强度继续升高,太赫兹的透射振幅进一步衰减。图 4(b)为氧化铟-石英结构在不同紫外光光强照射下的太赫兹透射频域谱,太赫兹的透射强度随紫外光光强的增加而明显减小。图 5(a)显示在 $0.2 \sim 2.6 \text{ THz}$ 频率范围内,在不同强度紫外激励光激发下,氧化

铟-石英结构的太赫兹透射谱;图 5(b)显示在 $0.2 \sim 2.6 \text{ THz}$ 的频率范围内,不同强度紫外激励光下,样品调制因子的大小^[11-12]。从图 5 中可以看出氧化铟半导体材料即使在较弱的紫外光激发下,对于透射太赫兹强度的调制效果也十分显著。本实验中,在 $7 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 功率密度的紫外光激励下,氧化铟-石英样品的太赫兹调制因子已接近于 50%。

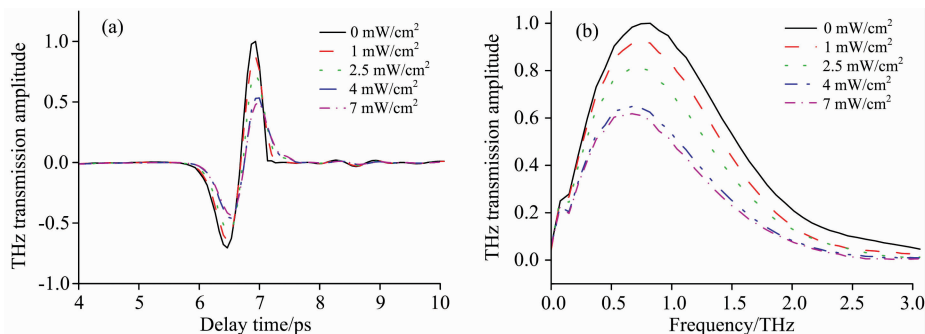


图 4 (a) 不同光强的紫外光激励下氧化铟-石英结构的太赫兹时域谱图;
(b) 不同光强的紫外光激励下氧化铟-石英结构的太赫兹频域谱图

Fig. 4 (a) Time-domain spectroscopy of an indium oxide/quartz structure under various UV light intensities; (b) THz transmission amplitude spectra of an indium oxide/quartz structure under various UV light intensities

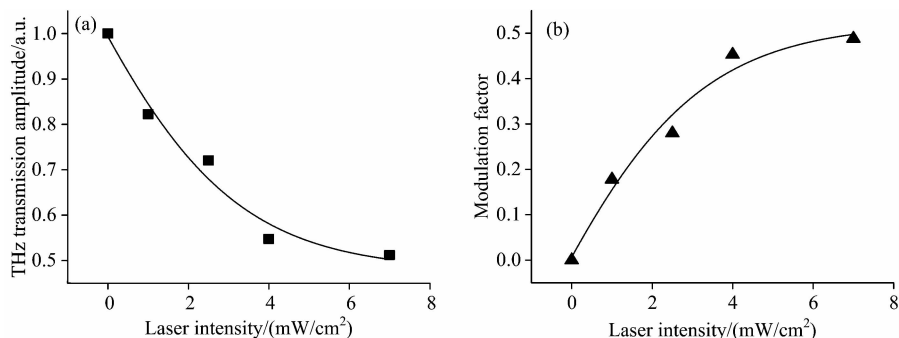


图 5 不同光强的紫外光激励下,在 $0.2 \sim 2.6 \text{ THz}$ 频段范围内,氧化铟-石英结构对太赫兹的透射强度 (a) 和调制因子 (b)
Fig. 5 The THz amplitude transmission (a) and modulation factor (b) averaged over a frequency window in the $0.2 \sim 2.6 \text{ THz}$ range under various UV light intensities for the $\text{In}_2\text{O}_3/\text{quartz}$ structure

在 T_{\perp} 模式下, 在不同光强紫外光照射下以金属线栅为衬底的氧化铟纳米结构的时域光谱如图 6(a)所示。当紫外光功率密度为 $4 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时, 透射太赫兹振幅衰减为 53%。在低紫外光强激发下, 样品显示出对太赫兹较好的调制特性。图 6(b)为在 T_{\parallel} 模式下, 在不同紫外光光强照射下的太赫兹时域谱, 当紫外光功率密度为 $2.5 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时, 透射振幅减少量约为 22%; 图 6(d)为 T_{\parallel} 模式不同光强的紫外光

照射下对应的频域谱, 紫外光功率密度为 $2.5 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时, 透射振幅调制深度已趋于饱和。在 T_{\perp} 模式下, 氧化铟-金属线栅结构在 $7 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 紫外光照射下的频域谱如图 6(c)所示, 其调制深度约为同光强下 T_{\parallel} 模式调制深度的 3.6 倍。

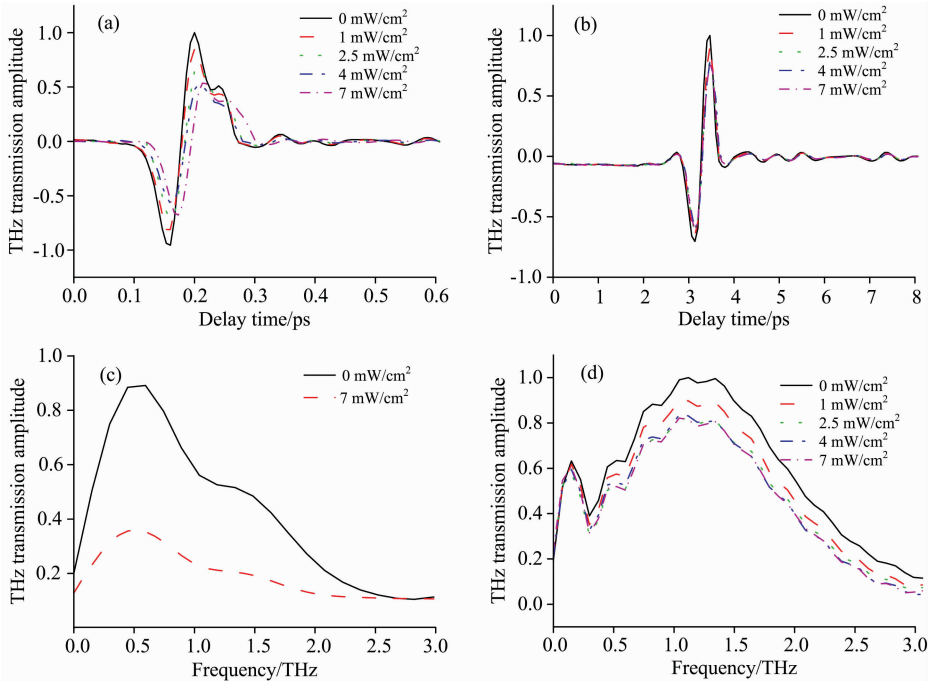


图 6 不同强度紫外光激励下, 氧化铟-金属线栅结构的 T_{\perp} 模式太赫兹时域谱图 (a) 和 T_{\parallel} 模式的时域谱图 (b); (c) 紫外光以 $7 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 功率密度激励下, 氧化铟-金属线栅结构的 T_{\perp} 模式太赫兹频域谱图; (d) 不同强度紫外光激励下, 氧化铟-金属线栅结构的 T_{\parallel} 模式的透射频域谱图

Fig. 6 Time-domain spectroscopy of an In_2O_3 /metal wire grid structure under various UV light intensities in T_{\perp} (a) and T_{\parallel} status (b); (c) THz transmission amplitude spectra of an In_2O_3 /metal wire grid structure under UV light with an intensity of $7 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ in T_{\perp} mode; (d) THz transmission amplitude spectra of an In_2O_3 /metal wire grid structure under various UV light intensities in T_{\parallel} mode

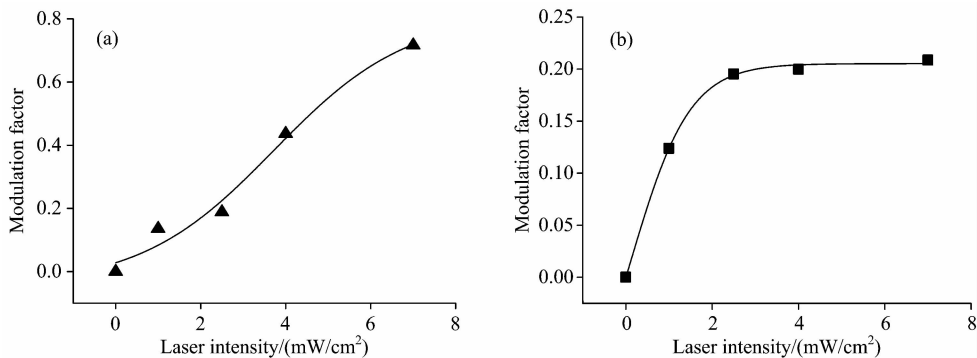


图 7 不同强度紫外光激励下, 在 $0.2 \sim 2.6 \text{ THz}$ 频段范围内, T_{\perp} 模式下氧化铟-金属线栅结构对太赫兹波的调制因子 (a) 和 T_{\parallel} 模式下氧化铟-金属线栅结构对太赫兹波的调制因子 (b)

Fig. 7 The THz modulation factor in T_{\parallel} (a) and T_{\perp} status (b) averaged over a frequency window in the $0.2 \sim 2.6 \text{ THz}$ range, under various UV light intensities for the In_2O_3 /metal wire grid structure

在不同强度紫外光激励下, 氧化铜-金属线栅结构的太赫兹调制因子如图 7 所示。在 T_{\perp} 模式下, 样品在 $7 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 功率密度的紫外光照射下, 太赫兹透射振幅的调制因子可达 71%, 图 7(b) 为不同强度紫外光激励下, T_{\parallel} 模式下氧化铜-金属线栅结构对太赫兹的调制谱, 当紫外光功率密度为 $1 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时, 对透射太赫兹的调制深度为 12.4%; 当功率密度增至 $4 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时, 调制深度为 20%, 并且开始趋于饱和。实验发现紫外激光诱导氧化铜, 对 T_{\perp} 方向透射太赫兹的调制效果要远高于 T_{\parallel} 方向。紫外激光的光子能量大于氧化铜的能带隙(直接带隙 3.6 eV, 间接带隙 2.6 eV), 以低光强就可在氧化铜表面激发出电子空穴对。无紫外光照射下, 氧气分子被吸附到氧化铜表面, 与自由电子反应生成 O^{2-} 离子态。当用紫外光照射氧化铜后, 氧化铜的表面被激发出电子空穴对, 空穴会被氧化铜中的 O^{2-} 离子态和缺陷态束缚, 释放电子到导带, 增强了样品的电导率, 而透射太赫兹的调制因子与氧化铜电导率有很好的-一致性。结合高温可使样品表面产生缺陷态, 利用紫外光作为外激励光, 可明显

增强 T_{\perp} 模式下, 氧化铜-金属线栅结构对透射太赫兹的调制。

3 结 论

利用紫外光作为外激励光, 研究了以金属线栅为衬底的氧化铜纳米结构对于太赫兹波的调制。氧化铜-金属线栅线长方向与太赫兹电场偏振方向垂直时, 紫外光激励下的样品对于太赫兹的调制效果较为明显, 功率密度为 $7 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时, 调制深度可达 71%; 当氧化铜-金属线栅线长方向与太赫兹电场偏振方向平行时, 紫外激光激励下的样品对太赫兹的调制作用明显减弱, 功率密度为 $7 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$ 时, 调制深度约为 20%。基于氧化铜半导体材料对紫外光的光响应特性, 利用金属线栅为衬底的氧化铜纳米结构, 在作为太赫兹波段高性能偏振器的同时, 可作为紫外光控的偏振开关器件使用, 具有一定的意义, 可使太赫兹偏振器得到更加广泛的应用。

References

- [1] Lee Yun-Shik. Principles of Terahertz Science and Technology. Springer, 2009.
- [2] Ferguson, Bradley, Zhang Xicheng. Nature Materials, 2002.
- [3] Sun L, Lv Z H, Wu W, et al. Appl. Opt., 2010, 49(11): 2066.
- [4] Chen H, Sun Y M, Wang Li. Chinese Physics B, 2009, 18(10): 4287.
- [5] Alius H, Dodel G. Infrared Phys., 1991, 32: 1.
- [6] Chen Sai, Fan Fei, Miao Yinping, et al. Nanoscale, 2016, 8(8): 4713.
- [7] Ly Nguyen Le, Nguyen Manh Thang, Le Minh Thuy, et al. Opt. Commun., 2017, 383: 244.
- [8] Xing Yuanyuan, Zhang Xiaoyu, Zhang Qiang, et al. Opt. Commun., 2018, 415: 115.
- [9] Ameneh Nejati, Ferdows B Zarrabi, Maryam Rahimi, et al. Optik, 2015, 126(19): 2153.
- [10] He Y N, Zhang B, Shen J L, et al. Opt. Commun., 2015, 356: 595.
- [11] Zhang B, He T, Shen J, et al. Opt. Lett., 2014, 39(21): 6110.
- [12] Zhang B, Lv L F, Shen J L, et al. Appl. Phys. Lett., 2015, 107(9): 093301.
- [13] Lee Gyuseok, Maeng Inhee, Kang Chul, et al. Appl. Phys. Lett., 2018, 112: 111101.
- [14] Chen H T, Padilla W J, Zide J M O, et al. Opt. Lett., 2007, 32(12): 1620.
- [15] Cao Y, Gan S, Geng Z, et al. Sci. Rep., 2016, 6: 22899.
- [16] LI Fang-fang, LI Dong, SHU Shi-wei, et al(栗芳芳, 李 栋, 舒时伟, 等). Journal of Infrared and Millimeter Waves(红外与毫米波学报), 2010, 29(6): 452.
- [17] Hong J T, Park J Y, Lee S, et al. Opt. Mater. Express, 2016, 6(12): 3751.
- [18] Tian W, Zhang C, Zhai T, et al. Adv. Mater., 2014, 26(19): 3088.
- [19] Mazzillo M, Sciuto A, Marchese S. IEEE Sensors Journal, 2015, 15(3): 1858.
- [20] Ji H, Zhang B, Shen J, et al. Opt. Express, 2018, 26: 7204.

Study on Ultraviolet Light-Induced Metal Wire-Grid Polarizer in Terahertz Frequency Range

ZHANG Hong-run, JI Hong-yu, ZHAO Ping, LIN Gao-zhao, WANG Fu-he, ZHANG Bo*, SHEN Jing-ling*

Key Laboratory of Terahertz Optoelectronics, Ministry of Education, Department of Physics, Capital Normal University, Beijing 100048, China

Abstract In this paper, modulation characteristics of terahertz polarization transmission are studied based on the character of indium oxide nanofilm and metal wire-grid, using sample, indium oxide nanostructure with metal wire-grid as substrate, which is induced by ultraviolet laser. In the experiment, the indium oxide solution dissolved in ethanol is dripped onto the metal wire-grid, and the solution is just soaked in the gap of the metal wire-grid. At the same time, the temperature of the heating table is adjusted to 340 °C to thermal annealing on the indium oxide in the metal wire-grid. The results demonstrate that when the longitudinal direction of indium oxide-metal wire-grid is perpendicular to the polarization direction of terahertz electric field, the transmission intensity of the sample to terahertz is obviously attenuated induced by the low-intensity ultraviolet laser. When the UV power density is $7 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$, the modulation depth of terahertz induced by sample with UV laser can reach 71%. When the longitudinal direction of indium oxide-metal wire grid is parallel to the polarization direction of terahertz electric field, the modulation effect of the sample excited by UV laser on terahertz is obviously weakened. When the UV power density is $7 \text{ mW} \cdot \text{cm}^{-2}$, the modulation depth of terahertz induced by sample with UV laser is about 20%. The presence of oxygen vacancies in indium oxide nanofilm makes the material particularly responsive to UV laser. With the absence of UV laser, oxygen molecules in the sample environment are adsorbed to the surface of indium oxide, and the O^{2-} ion state is generated due to chemical reaction. When the sample is excited by UV laser with photon energy higher than the width of indium oxide band gap, electron hole pairs are excited on the surface of indium oxide, and the holes are bound by the O^{2-} ion state and defect state on the surface of indium oxide, so as to release electrons into the conduction band and enhance the conductivity of the sample. Terahertz transmission intensity of indium oxide samples has a good correlation with the conductivity of indium oxide in the terahertz frequency range. Using existence of free electrons oscillating on the metal surface, metal wire-grid makes the electric field direction of terahertz polarized wave which parallel to the longitudinal direction of the metal wire-grid excite the electrons oscillation along the metal wire-grid direction. When electrons collide with atoms in a metal lattice, the polarized wave decay with radiating. However, the terahertz polarized wave whose electric field direction is perpendicular to the longitudinal direction of indium oxide-metal wire grid cannot stimulate free electron oscillation due to the limitation of the periodic structure, and it mainly shows transmission characteristics. In combination with the surface defect characteristics of indium oxide, UV laser can be used as an optically controlled polarization switch of indium oxide-metal wire grid structure, and indium oxide-metal wire-grid structure polarizer can be well applied to optically controlled polarization modulation interahertz frequency range.

Keywords Metal wire-grid; Indium oxide; Terahertz time domain spectroscopy; Polarization

(Received May 24, 2018; accepted Sep. 30, 2018)

* Corresponding authors