

文章编号: 1005-5630(2021)06-0052-06

DOI: 10.3969/j.issn.1005-5630.2021.06.009

ZrTe₅ 的太赫兹辐射研究

卢文晖, 夏宇, 王锋, 吕海慧, 刘峥, 李敏

(上海理工大学光电信息与计算机工程学院, 上海 200093)

摘要: 为了研究层状 ZrTe₅(五碲化锆)在飞秒脉冲激发下的超快瞬态太赫兹辐射, 利用太赫兹时域反射系统对其进行了测试分析。通过分析层状 ZrTe₅ 太赫兹电场幅度与飞秒激光泵浦功率及泵浦脉冲偏振关系, 获得了层状 ZrTe₅ 产生太赫兹辐射的主要机理。同时还对比了相同泵浦条件下层状 ZrTe₅ 和本征 GaAs(砷化镓)太赫兹辐射强度。研究表明, 层状 ZrTe₅ 具有带隙结构窄、吸收深度浅、光生电子剩余能量较大、载流子迁移率较高等优势, 在太赫兹产生方面比传统半导体具有更好的性能。该研究可为发现高效、高度集成化太赫兹辐射源提供参考。

关键词: 光谱学; 太赫兹辐射; photo-Dember 效应; 层状五碲化锆(ZrTe₅)

中图分类号: O 433.1 **文献标志码:** A

Terahertz radiation study of ZrTe₅

LU Wenhui, XIA Yu, WANG Feng, LYU Haihui, LIU Zheng, LI Min

(School of Optical-Electrical and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

Abstract: In order to study transient terahertz radiation from layered ZrTe₅ (zirconium pentatelluride) excited by femtosecond pulses, terahertz time domain system was used to test and analyze the terahertz emission. By analyzing the relationship between terahertz electric field of layered ZrTe₅ and intensity/polarization of femtosecond laser pulse, it was obtained that the main mechanism of terahertz radiation generation by layered ZrTe₅. At the same time, the terahertz radiation intensity of layered ZrTe₅ and intrinsic GaAs (gallium arsenide) under the same pumping conditions was also compared. Studies have shown that the layered ZrTe₅ has narrow band gap structure, shallow absorption depth, larger residual energy of photogenerated electrons and higher carrier mobility, which has better performance than traditional semiconductors in terms of terahertz generation. The experimental research provides a reference for the discovery of efficient and highly integrated terahertz radiation sources.

Keywords: spectroscopy; terahertz radiation; photo-Dember effect; layered zirconium pentatelluride(ZrTe₅)

收稿日期: 2021-03-22

基金项目: 国家自然科学基金(11727812)

作者简介: 卢文晖(1996—), 女, 硕士研究生, 研究方向为太赫兹光谱分析技术。E-mail: 3077504372@qq.com

通信作者: 李敏(1986—), 女, 副教授, 研究方向为太赫兹光梳光谱。E-mail: minli_1220@163.com

引言

太赫兹(THz)是指频率在 0.1~10 THz(波长为 0.03~3 mm)的电磁波, 介于微波和红外之间。得益于超快超强激光技术的发展, 使得太赫兹脉冲在宇宙探索、国防军事、材料特性检测、通信雷达、医学诊断及安全检测等领域得到广泛应用^[1-6]。

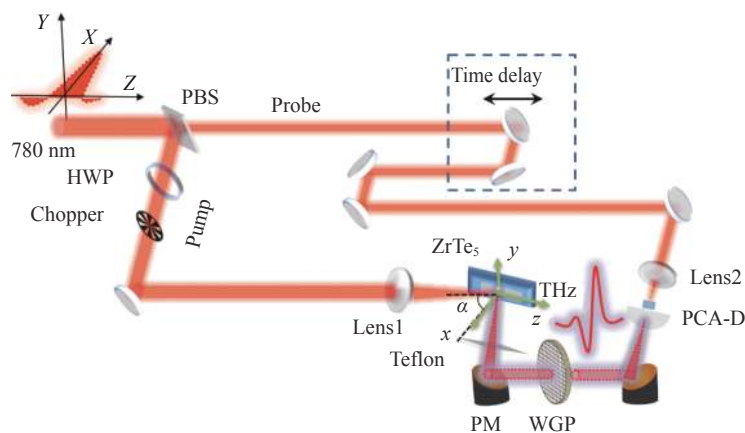
近年来, 太赫兹发射光谱也逐渐成为一种研究拓扑材料表面特性的有效方法。2015年 Zhu 等^[7]指出, 在 Bi₂Se₃ 导带上方约 1.5 eV 处发现了第二狄拉克表面态, 且在第二狄拉克表面态产生的太赫兹辐射来自表面耗尽场而第一狄拉克表面态产生的太赫兹辐射来自非线性光整流。2018年 Huang 等^[8]指出, 在斜入射下, MoS₂产生的太赫兹辐射来自于表面对称破缺诱导的谐振光整流和表面耗尽场。经与 n 型 GaAs 的太赫兹波形对比可得, MoS₂ 被证明为 p 型。因此, 在太赫兹波段探索新型材料的光激发特性, 以实现宽频段、高效率发射一直是研究的重点。利用不同材料产生太赫兹辐射的研究也由来已久, 本征半导体、掺杂半导体、超导材料、绝缘体-金属相变材料等的相继引入也为太赫兹的应用提供了新的领域^[9-12]。Mendis 等^[10]研究了 p 型 InAs 产生的太赫兹辐射, 并指出了掺杂物极性的的重要性, 证明了在 InAs 中掺杂受体比掺杂施主产生的太赫兹

辐射强。Shen 等^[11]发现, 低温生长的 GaAs 光电发射器产生的太赫兹辐射频谱可达 30 THz。但受限于材料的迁移率、载流子浓度等特性, 太赫兹波辐射强度及谱宽未能实现大幅度提升。

层状五碲化锆(ZrTe₅)是一种兼具一维链状和二维层状结构特点的拓扑材料, 能隙约为 80 meV^[13], 因其高的载流子迁移率和窄的带隙结构成为潜在的太赫兹源。目前, 关于层状 ZrTe₅ 产生太赫兹辐射的机理尚未见报道, 为此本文利用太赫兹发射光谱系统, 研究层状 ZrTe₅ 表面如何产生太赫兹辐射。利用飞秒激光脉冲, 激发层状 ZrTe₅ 样品产生太赫兹波, 并将其与传统本征砷化镓(GaAs)产生太赫兹信号强度进行比较, 得到层状 ZrTe₅ 的太赫兹辐射机理。

1 实验系统组成

实验采用的太赫兹时域反射系统实验装置如图 1 所示: XYZ 为激光光源坐标系, 入射光沿 Z 轴传播, P 偏振(S 偏振)波沿 X 轴(Y 轴)振动; xyz 为样品坐标系。实验中所用激光器(ErFemto-780 nm ProL100, 上海朗研光电有限公司)的中心波长为 780 nm, 脉冲宽度为 100 fs, 重复频率为 80 MHz, 输出功率为 180 mW。将输出的激光脉冲一分为二, 一束作为泵浦光, 用以激发 ZrTe₅ 样品, 另一束作为探测光, 用以探测太赫兹信号。泵浦光经透镜 Lens1($f=180$ mm)



PBS-偏振分光棱镜; HWP-二分之一波片; Chopper-斩波器; Lens1、Lens2-聚焦透镜; PM-离轴抛物面镜; Teflon-特氟龙板; WGP-THz 线栅偏振片; PCA-D-探测光电导天线; Time-delay-时间延迟装置。

图 1 太赫兹时域反射系统实验装置

Fig. 1 Experimental setup of terahertz time domain reflectance system

聚焦在样品上,产生的太赫兹脉冲由一对离轴抛物面镜收集并聚焦在探测光电导天线(PCA-D)上。

值得注意的是,在样品之后的光路中放置了一个阻挡残余泵浦脉冲的特氟龙平板,而产生的太赫兹脉冲可以通过吸收率小的平板。与此同时,探测脉冲经时间延迟装置通过聚焦透镜 Lens2($f=8\text{ mm}$)聚焦在光电导天线上,光激发产生的自由载流子在太赫兹电场作用下加速运动,产生微电流,此微电流经锁相放大器采集,得到太赫兹时域光谱信息。在泵浦光路中插有半波片(HWP),通过旋转半波片(HWP)调节泵浦光偏振状态,半波片旋转角为 φ ,当 φ 为 0° 时,泵浦光为水平偏振状态。泵浦光以 45° (图1中 α 角)入射到样品表面,在反射方向收集太赫兹波,而太赫兹波的偏振状态则通过太赫兹线栅偏振片(WGP)检测。

2 实验原理与结果

在实验环境温度为 $(20.8\pm 1)^\circ\text{C}$,相对湿度为25.6%的条件下,通过图1所示的实验装置对本征GaAs和层状ZrTe₅的太赫兹辐射特性进行测试。首先,探测层状ZrTe₅在光激发下产生的太赫兹辐射,由于层状ZrTe₅样品极薄且小,故将其附着在硅衬底上;然后,测量硅衬底在光激发下的太赫兹时域图,如图2所示,硅衬底上无太赫兹电场产生;最后,测量光激发层状ZrTe₅时的太赫兹时域图,排除衬底硅对太赫兹电场的贡献,确保产生的太赫兹电场全部来自层状ZrTe₅。

已有的研究表明,半导体产生太赫兹辐射的有效机制有光整流效应、表面耗尽场、photo-Dember效应^[14-16]。宽带隙半导体材料如GaAs^[17-18]、InP^[19]等产生太赫兹辐射的主要机制是半导体表面的耗尽场效应。由于费米能级交界面处的“针孔效应”,导带和价带弯曲,形成一定宽度的耗尽层。当作用在半导体表面的入射激光光子能量大于半导体带隙时,光子被吸收,产生电子空穴对,它们在半导体内的静电场驱动下,产生垂直表面且流向内部的瞬态漂移电流,从而产生太赫兹辐射。漂移电流可表示为^[20]

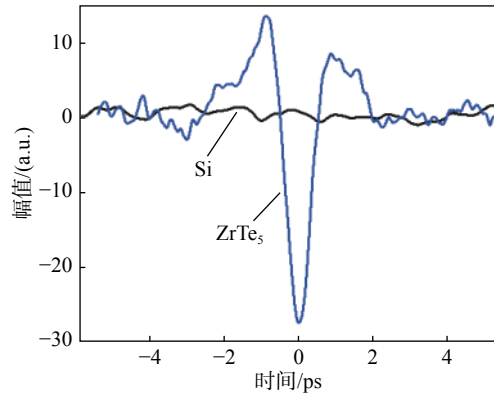


图2 Si和层状ZrTe₅产生太赫兹辐射的时域图

Fig. 2 Time domain of terahertz radiation generated by Si and layered ZrTe₅

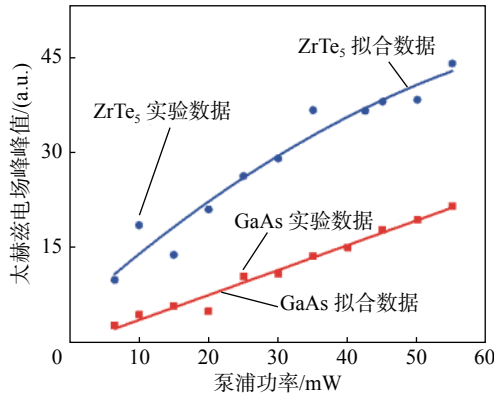
$$J_{\text{dri}} = Ne\mu E_s \propto I_{\text{photon}} \quad (1)$$

式中: N 为光生载流子; e 为电子电荷; μ 为迁移率; E_s 为表面耗尽场; I_{photon} 为泵浦光强。表面耗尽场与泵浦光强无关,光生载流子与泵浦光强成正比,即太赫兹电场与泵浦功率成正比。对于InAs^[21]、InSb^[22]、GaSb^[23]等窄带隙材料,photo-Dember效应是其表面产生太赫兹辐射的主要机制。photo-Dember效应是指,光激发的电子空穴对在垂直样品表面的方向形成密度梯度,电子空穴对迁移率的差异导致了扩散电流的产生,从而产生太赫兹辐射。此效应可描述为^[20]

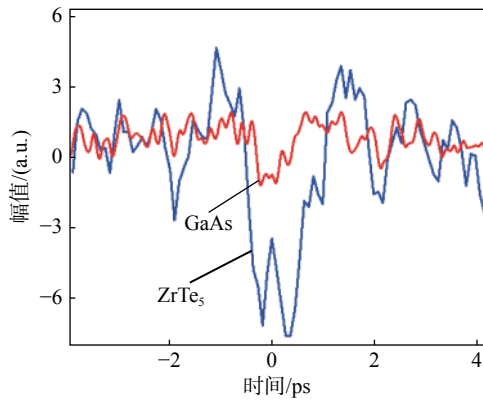
$$J_{\text{dif}} = Ne\mu E_d \propto N \frac{\partial N}{\partial Z} \propto I_{\text{photon}}^2 \quad (2)$$

式中: Z 为垂直样品表面的方向; E_d 为photo-Dember电场。其中 E_d 与光生载流子密度梯度成正比,扩散电流与瞬态电场和光生载流子密度的倍数成比例,因此正比于泵浦功率的平方。

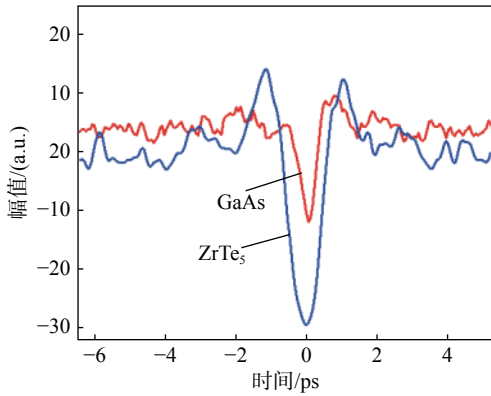
通过实验,得到太赫兹电场幅度随泵浦功率变化的函数关系,明确本征GaAs和层状ZrTe₅产生太赫兹辐射机理。层状ZrTe₅产生的太赫兹辐射与泵浦功率的关系如图3(a)所示,实验数据(圆点)符合二次拟合。由photo-Dember效应引起的扩散电流式(2)可知,扩散电流正比于泵浦功率的平方,即太赫兹电场正比于泵浦功率的平方。因此,证明photo-Dember效应是层状ZrTe₅产生太赫兹辐射的有效机理之一。本征GaAs太赫兹电场与泵浦功率关系的实验数据(方块)在线性函数下拟合良好。根据耗尽场引



(a) 太赫兹电场与泵浦功率的关系



(b) 泵浦功率 6.5 mW 激发



(c) 泵浦功率 55 mW 激发

图3 不同泵浦功率下本征 GaAs 和层状 ZrTe₅ 的太赫兹时域图Fig. 3 Terahertz time domain spectrum of intrinsic GaAs and layered ZrTe₅ at different pump power

起的漂移电流式(1)可知, 太赫兹电场与泵浦功率成正比, 即本征 GaAs 产生太赫兹辐射的有效机理之一是表面耗尽场^[16-17]。

在实验中, 分别测量了泵浦功率在 6.5 mW 和 55 mW 下本征 GaAs 和层状 ZrTe₅ 的太赫兹时域图。如图 3(b)、(c)所示: 泵浦功率为 6.5 mW 时, 层状 ZrTe₅ 样品产生太赫兹电场高于本征

GaAs; 泵浦功率为 55 mW 时, 层状 ZrTe₅ 产生太赫兹电场是本征 GaAs 的 2 倍。在相同实验条件下, 当 780 nm (1.59 eV) 激光激发样品时, 相对于本征 GaAs, 层状 ZrTe₅ 带隙较小, 吸收深度较浅, 光生电子的剩余能量相对较大。而且, 层状 ZrTe₅ 具有高的载流子迁移率, 使得在相同的人射激光功率下, 层状 ZrTe₅ 表面光生载流子的浓度梯度应该比本征 GaAs 表面的大得多。因此, 层状 ZrTe₅ 产生太赫兹辐射强度高于本征 GaAs。

为了进一步研究层状 ZrTe₅ 太赫兹辐射机制。实验测量了太赫兹电场幅度随泵浦光偏振角的关系。如图 1 所示, 泵浦光偏振状态通过半波片 (HWP) 来改变, 太赫兹脉冲偏振状态通过太赫兹线栅偏振片 (WGP) 检测。太赫兹电场的水平偏振 (S_x) 和竖直偏振 (S_y) 分量可分别表示为:

$$S_x = E_{OR-z} \cos \alpha + \frac{\partial J}{\partial t} \sin \alpha \quad (3)$$

$$S_y = E_{OR-y} \quad (4)$$

式中: E_{OR-y} 和 E_{OR-z} 分别表示在平行于样品的 y 和 z 方向光整流效应产生的太赫兹电场; J 为电流密度, 表示光激载流子在耗尽场和 photo-Dember 效应作用下产生的光电流。对于表面耗尽场和 photo-Dember 效应诱导的太赫兹电场, 其偏振状态与泵浦光偏振态无关。表面耗尽场产生的太赫兹电场, 其偏振态由半导体掺杂类型决定, photo-Dember 效应产生的太赫兹电场的偏振态由电子与空穴的迁移率差决定。而光整流效应是与偏振态相关的, 其对产生太赫兹的贡献可以通过与泵浦光偏振角的关系判定。如图 4 所示, 水平偏振太赫兹电场是泵浦光偏振角的余弦函数, 周期为 4φ , 非线性光整流效应对水平偏振太赫兹电场的贡献约为 10%。

由式(4)可知, 由于光电流垂直于样品表面, 因此不产生太赫兹电场, 竖直偏振太赫兹电场全部由光整流效应产生。由实验可以观察到, 竖直偏振太赫兹与泵浦光偏振角没有明显的依赖关系, 这是因为 y 方向的二阶非线性磁化率相对于 z 方向较小。由于窄带隙层状 ZrTe₅ 耗尽场相当弱, 可以忽略不计, 而光电流是 photo-Dember 效应作用下产生的, 所以, photo-Dember 效应

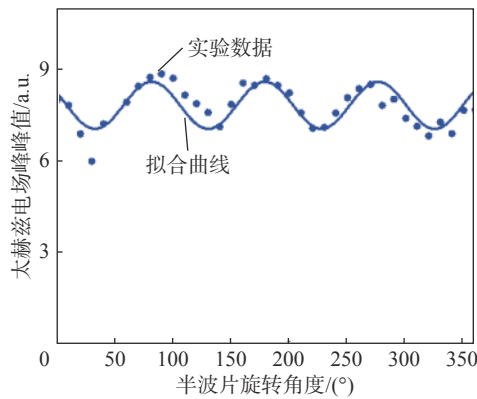


图 4 太赫兹电场和泵浦光偏振角的关系

Fig. 4 THz electric as a function of pump polarization angle

在层状 ZrTe₅ 产生太赫兹辐射中占主导地位。在不同偏振光激发下，水平偏振 (S_x) 和竖直偏振 (S_y) 太赫兹电场时域图如图 5 所示。由于 photo-Dember效应在层状 ZrTe₅ 产生的太赫兹辐射中占主导地位，且是 photo-Dember 效应引起的太赫兹辐射，其仅存在于水平偏振方向。因此，在

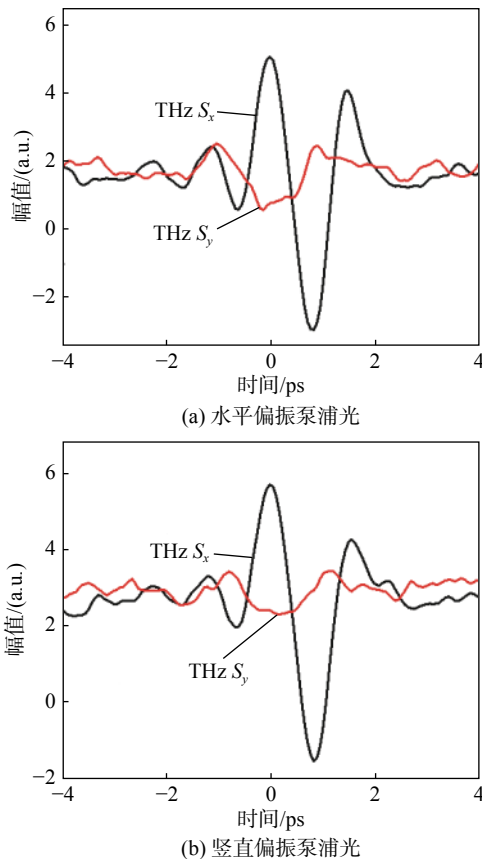


图 5 不同偏振光激发下产生的太赫兹时域图

Fig. 5 Terahertz time domain diagram of different polarized light excitation

不同偏振光激发下，水平偏振太赫兹电场始终大于竖直偏振太赫兹电场。

3 结 论

层状 ZrTe₅ 的太赫兹辐射强度与传统半导体 GaAs 相比，明显高于传统半导体 GaAs，且由于层状 ZrTe₅ 带隙更窄，激发所需光子能量更小，更容易激发产生太赫兹辐射。此外，ZrTe₅ 表面产生太赫兹辐射的机理与常用的光电导天线和非线性晶体产生太赫兹辐射的机理相比，不需要外加偏置电场，不需要设计天线结构，而只需利用表面场就能产生太赫兹辐射，不会引起辐射损伤。该研究对分析其他拓扑材料在太赫兹波段的辐射特性研究具有参考作用。

参考文献：

- [1] 何明霞, 陈涛. 太赫兹科学技术在生物医学中的应用研究 [J]. 电子测量与仪器学报, 2012, 26(6): 471 – 483.
- [2] 詹新宇, 阳莎. 太赫兹光谱技术在安全检查中的应用及研究进展 [J]. 重庆医学, 2019, 48(20): 3549 – 3552, 3557.
- [3] 张雯, 雷银照. 太赫兹无损检测的进展 [J]. 仪器仪表学报, 2008, 29(7): 1563 – 1568.
- [4] 周志成, 张中浩, 刘建军, 等. 太赫兹波技术在电网设备绝缘材料检测中的应用 [J]. 高压电器, 2019, 55(10): 216 – 223.
- [5] 赵国忠, 申彦春, 刘影. 太赫兹技术在军事和安全领域的应用 [J]. 电子测量与仪器学报, 2015, 29(8): 1097 – 1101.
- [6] 蒋林华, 王尉苏, 童慧鑫, 等. 太赫兹成像技术在人体安检领域的研究进展 [J]. 上海理工大学学报, 2019, 41(1): 46 – 51.
- [7] ZHU L G, KUBERA B, FAI MAK K, et al. Effect of surface states on terahertz emission from the Bi₂Se₃ surface [J]. Scientific Reports, 2015, 5: 10308.
- [8] HUANG Y Y, ZHU L P, YAO Z H, et al. Terahertz surface emission from layered MoS₂ crystal: competition between surface optical rectification and surface photocurrent surge [J]. The Journal of Physical Chemistry C, 2018, 122(1): 481 – 488.
- [9] ADOMAVIČIUS R, URBANOWICZ A, MOLIS G, et

- al. Terahertz emission from *p*-InAs due to the instantaneous polarization[J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 85(13): 2463 – 2465.
- [10] MENDIS R, SMITH M L, BIGNELL L J, et al. Strong terahertz emission from (100) *p*-type InAs[J]. *Journal of Applied Physics*, 2005, 98(12): 126104.
- [11] SHEN Y C, UPADHYA P C, LINFIELD E H, et al. Ultrabroadband terahertz radiation from low-temperature-grown GaAs photoconductive emitters[J]. *Applied Physics Letters*, 2003, 83(15): 3117 – 3119.
- [12] ANTSYGIN V D, NIKOLAEV N A. Efficiency of generation of terahertz radiation in GaAs, InAs, and InSb crystals[J]. *Optoelectronics, Instrumentation and Data Processing*, 2011, 47(4): 338 – 344.
- [13] LI X B, HUANG W K, LV Y Y, et al. Experimental observation of topological edge states at the surface step edge of the topological insulator ZrTe₅[J]. *Physical Review Letters*, 2016, 116(17): 176803.
- [14] MALEVICH V L, ADOMAVIČIUS R, KROTKUS A. THz emission from semiconductor surfaces[J]. *Comptes Rendus Physique*, 2008, 9(2): 130 – 141.
- [15] ZHANG X C, HU B B, DARROW J T, et al. Generation of femtosecond electromagnetic pulses from semiconductor surfaces[J]. *Applied Physics Letter*, 1990, 56(11): 1011 – 1013.
- [16] APOSTOLOPOULOS V, BARNES M E. THz emitters based on the photo-Dember effect[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2014, 47(37): 374002.
- [17] HU B B, ZHANG X C, AUSTON D H. Terahertz radiation induced by subband-gap femtosecond optical excitation of GaAs[J]. *Physical Review Letters*, 1991, 67(19): 2709 – 2712.
- [18] JOHNSTON M B, WHITTAKER D M, CORCHIA A, et al. Simulation of terahertz generation at semiconductor surfaces[J]. *Physical Review B*, 2002, 65(16): 165301.
- [19] NAKAJIMA M, HANGYO M, OHTA M, et al. Polarity reversal of terahertz waves radiated from semi-insulating InP surfaces induced by temperature[J]. *Physical Review B*, 2003, 67(19): 195308.
- [20] FANG Z J, WANG H T, WU X J, et al. Nonlinear terahertz emission in the three-dimensional topological insulator Bi₂Te₃ by terahertz emission spectroscopy[J]. *Applied Physics Letters*, 2019, 115(19): 191102.
- [21] LIU K, XU J Z, YUAN T, et al. Terahertz radiation from InAs induced by carrier diffusion and drift[J]. *Physical Review B*, 2006, 73(15): 155330.
- [22] GU P, TANI M, KONO S, et al. Study of terahertz radiation from InAs and InSb[J]. *Journal of Applied Physics*, 2002, 91(9): 5533 – 5537.
- [23] ASCÁZUBI R, SHNEIDER C, WILKE I, et al. Enhanced terahertz emission from impurity compensated GaSb[J]. *Physical Review B*, 2005, 72(4): 045328.

(编辑: 刘铁英)