

國立交通大學

光電工程研究所

碩士論文

利用飛秒脈衝形變技術研究光導天線輻射兆赫波之特性

The Study of Terahertz Radiation Mechanism from Photoconductive
Antenna by Femtosecond Pulse Shaping Technology

研究生：林松輝

指導教授：潘犀靈 教授

中華民國九十七年七月

利用飛秒脈衝形變技術研究光導天線輻射兆赫波之特性
The Study of Terahertz Radiation Mechanism from Photoconductive
Antenna by Femtosecond Pulse Shaping Technology

研究生：林松輝

Student : Sung-Hui Lin

指導教授：潘犀靈教授

Advisor : Ci-Ling Pan

國立交通大學
光電工程研究所
碩士論文

A Thesis

Submitted to Department of Photonics &
Institute of Electro-Optical Engineering
College of Electrical Engineering
National Chiao Tung University
in partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of
Master
in

Electro-Optical Engineering

July 2008

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國九十七年七月

國立交通大學

博碩士論文全文電子檔著作權授權書

(提供授權人裝訂於紙本論文書名頁之次頁用)

本授權書所授權之學位論文，為本人於國立交通大學光電工程研究所，96 學年度第 2 學期取得碩士學位之論文。

論文題目：利用飛秒脈衝形變技術研究光導天線輻射兆赫波之特性

指導教授：潘犀靈 教授

同意 不同意

本人茲將本著作，以非專屬、無償授權國立交通大學與台灣聯合大學系統圖書館：基於推動讀者間「資源共享、互惠合作」之理念，與回饋社會與學術研究之目的，國立交通大學及台灣聯合大學系統圖書館得不限地域、時間與次數，以紙本、光碟或數位化等各種方法收錄、重製與利用；於著作權法合理使用範圍內，讀者得進行線上檢索、閱覽、下載或列印。

論文全文上載網路公開之範圍及時間：

本校及台灣聯合大學系統區域網路	<input checked="" type="checkbox"/> 中華民國 98 年 09 月 01 日公開
校外網際網路	<input checked="" type="checkbox"/> 中華民國 98 年 09 月 01 日公開

授權人：林松輝

親筆簽名：林松輝

中華民國 2008 年 08 月 27 日

國立交通大學

博碩士紙本論文著作權授權書

(提供授權人裝訂於全文電子檔授權書之次頁用)

本授權書所授權之學位論文，為本人於國立交通大學光電工程研究所，96 學年度第 2 學期取得碩士學位之論文。

論文題目：利用飛秒脈衝形變技術研究光導天線輻射兆赫波之特性
指導教授：潘犀靈 教授

■ 同意

本人茲將本著作，以非專屬、無償授權國立交通大學，基於推動讀者間「資源共享、互惠合作」之理念，與回饋社會與學術研究之目的，國立交通大學圖書館得以紙本收錄、重製與利用；於著作權法合理使用範圍內，讀者得進行閱覽或列印。

授權人：林松輝

親筆簽名： 林松輝

中華民國 2008 年 08 月 27 日

國家圖書館博碩士論文電子檔案上網授權書

ID:GT009524503

本授權書所授權之學位論文，為本人於國立交通大學光電工程研究所，96 學年度第 2 學期取得碩士學位之論文。

論文題目：利用飛秒脈衝形變技術研究光導天線輻射兆赫波之特性

指導教授：潘犀靈 教授

茲同意將授權人擁有著作權之上列論文全文（含摘要），非專屬、無償授權國家圖書館，不限地域、時間與次數，以微縮、光碟或其他各種數位化方式將上列論文重製，並得將數位化之上列論文及論文電子檔以上載網路方式，提供讀者基於個人非營利性質之線上檢索、閱覽、下載或列印。

※ 讀者基於非營利性質之線上檢索、閱覽、下載或列印上列論文，應依著作權法相關規定辦理。

授權人：林松輝

親筆簽名：林松輝

民國 97 年 08 月 07 日

國家圖書館博碩士論文電子檔案上網授權書

ID:GT009524503

本授權書所授權之學位論文，為本人於國立交通大學光電工程研究所，96 學年度第 2 學期取得碩士學位之論文。

論文題目：利用飛秒脈衝形變技術研究光導天線輻射兆赫波之特性

指導教授：潘犀靈 教授

茲同意將授權人擁有著作權之上列論文全文（含摘要），非專屬、無償授權國家圖書館，不限地域、時間與次數，以微縮、光碟或其他各種數位化方式將上列論文重製，並得將數位化之上列論文及論文電子檔以上載網路方式，提供讀者基於個人非營利性質之線上檢索、閱覽、下載或列印。

※ 讀者基於非營利性質之線上檢索、閱覽、下載或列印上列論文，應依著作權法相關規定辦理。

授權人：林松輝

親筆簽名：林松輝

民國 97 年 08 月 07 日

國立交通大學

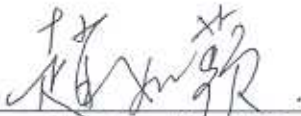
論文口試委員會審定書

本校 光電工程研究所 碩士班 林松輝 君

所提論文：利用飛秒脈衝形變技術研究光導天線輻射兆赫波之特性

合於碩士資格水準、業經本委員會評審認可。

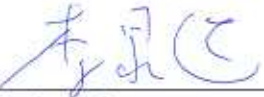
口試委員：



趙如蘋 教授

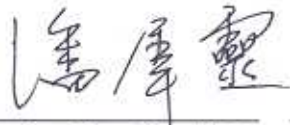


陳瓊華 助理教授




李晁遠 助理教授

指導教授：



潘屏靈 教授

所長： 教授

系主任： 教授

中華民國 97 年 7 月 31 日

利用飛秒脈衝形變技術研究光導天線輻射兆赫波之機制

研究生：林松輝

指導教授：潘犀靈教授

國立交通大學光電工程研究所 碩士班

摘 要

本論文中，我們探討了鎖模光脈衝中的啾頻對材料之影響進而了解在產生兆赫輻射中其對應角色。實驗上藉由整合脈衝整形術與泵探技術之啾頻控制泵探實驗，我們觀察到當啾頻量由負啾頻向正啾頻增加，載子鬆弛時間隨之變大，並透過頻率相關光載子剩餘動能行為解釋；此外，透過結合脈衝整形術與光導天線產生兆赫輻射實驗中，除了再次確認入射脈衝啾頻調變對兆赫輻射在啾頻符號對應輻射大小不對稱與正啾頻入射條件較佳輻射效果外，我們首度報導了光導天線在高激發密度下可觀察到時域訊號極大值與激發密度異常關係，此原因歸咎於雙光子吸收效應，該效應一開始雖為負貢獻，但當單光子吸收飽和時，價電子可透過雙光子吸收躍遷至導帶，天線輻射能量持續增加，且透過雙光子能帶可突破激發飽和限制產生高頻兆赫輻射，大幅突破目前光導天線頻譜極大值位在一兆赫之限制，此結果暗示使用倍頻光源激發光導天線在產生高頻兆赫輻射上之極大潛力。另外我們透過 Drude-Lorentz 模型與啾頻泵探量測所獲得之載子生命期，分析並解釋實驗現象，確立兆赫時析光譜系統理想天線標準與探討啾頻在取樣過程之影響，實驗上雖透過啾頻控制增輻時域訊號可提供訊號值增強，兆赫波頻寬卻將因低頻增強主導但高頻抑制相對變窄，故仍應利用材料成長條件調控載子鬆弛時間與動量時間；天線端為產生高頻寬兆赫光源需使用轉換極限脈衝激發天線；輻射偵測端為精準取樣兆赫波形與頻譜，建議使用短脈衝取樣並選用短載子鬆弛時間與短動量時間材料製作天線。

The Study of Terahertz Radiation Mechanism from Photoconductive Antenna by Femtosecond Pulse Shaping Technology

Student : Sung-Hui Lin

Advisor : Dr. Ci-Ling Pan

Institute of Electro-Optical Engineering
National Chiao Tung University

Abstract

In this thesis, role of chirp properties within mode locked pulses to generate efficiency and broadband THz radiation is investigated. By integration of pulse shaping technique and pump-probe measurement, behavior of increasing carrier relaxation time with chirp and positive sign is observed and explained by frequency dependent excess energy. Meanwhile, chirp- and power- dependence of THz radiation are studied using chirp controlled PC antenna based THz radiation system. We confirm the nature of asymmetry and positive preference of THz radiation for mode locked chirp pulse. We further observe an anomalous and nonlinear increase of THz radiation with increasing power of transform-limited and tight focusing exciting pulse. This could be due to distribution of carries from two photon absorption and is the first experimental report of two photon absorption induced THz radiation enhancement which have been predicted theoretically.

In addition, we analyze phenomenon observed by Drude-Lorentz model with obtained chirp- and power- dependent carrier lifetime and influence of chirp within sampling. Finally, we suggest possible approaches for generating high efficiency and broadband THz radiation : (1) positive chirp exciting can enhance radiation power but depress the high frequency part. (2) transform-limited exciting pulse can provide broader spectrum and further enhance power under highly tight focusing condition due to TPA contribution. (3) antenna with short carrier and momentum lifetime exciting by transform-limited pulse to decrease influence of PC sampling.

誌 謝

在兩年的碩士班生涯，首先要感謝指導老師潘犀靈教授的悉心指導，提供良好的研究資源和學習環境，讓我能夠順利完成實驗；感謝口試委員趙如蘋教授、陳瓊華教授與李晁達教授對於論文的意見和指正；研究上，特別感謝李晁達博士的教導，在遇到研究瓶頸時適時給予方向，並培養我在研究和做人的正確觀念和態度；感謝為這個實驗室奉獻的學長學長 Mika、Moya、宇泰，與我一起奮鬥的夥伴 Puma、Ken 哥、艾斯佛，學弟俞良、Choppy、三隻羊，有你們的陪伴，增添了許多快樂時光。

感謝媽媽在我求學時一路給予我最大的關懷與支持，最後要感謝游小皮給我的鼓勵和支持，這幾年不辭辛勞的陪伴我度過艱辛的研究歷程。因為你們，這篇論文才能順利完成，謹將此作品獻給所有幫助我的人。

2008/08/27 于 交大

目 錄

中文提要	i
英文提要	ii
誌謝	iii
目錄	iv
圖目錄	v
一、	緒論.....	1
二、	光導天線輻射與接收原理.....	5
2.1	光導天線輻射原理.....	5
2.2.	光導天線接收原理.....	11
三、	實驗技術與樣品.....	18
3.1	光脈衝形變.....	18
3.1.1	光脈衝形變系統.....	19
3.1.2	光脈衝形變演算法.....	20
3.1.3	自相干儀.....	23
3.2	泵探量測技術.....	25
3.3	低溫砷化鎵材料特性.....	26
四、	實驗結果與分析.....	29
4.1	啾頻控制泵探技術量測.....	29
4.2	啾頻控制兆赫時析光譜技術.....	36
4.2.1	天線輻射強度、寬度與啾頻相依性.....	37
4.2.2	雙光子吸收效應.....	41
4.2.3	光導天線取樣機制.....	48
五、	實驗結論與未來展望.....	53
5.1	實驗結論.....	53
5.2	未來展望.....	55
參考文獻	56

圖 目 錄

圖一	光導天線基本結構	5
圖二	(a)兆赫輻射時域強度和(b)兆赫輻射頻譜，脈衝寬度為 25fs、50fs、100fs、200fs、500fs	8
圖三	(a)兆赫輻射時域強度和(b)兆赫輻射頻譜，載子鬆弛時間為 0.1ps、0.2ps、0.5ps、1ps、2ps、5ps、10ps	8
圖四	(a)兆赫輻射時域強度和(b)兆赫輻射頻譜，動量鬆弛時間為 25fs、50fs、100fs、200fs、500fs	9
圖五	(a)兆赫輻射時域強度和(b)兆赫輻射頻譜，電場偏壓強度為 10^4 、 10^5 、 10^6 、 $5*10^6$ 、 10^7 、 $5*10^7$ 、 10^8 V/m	9
圖六	(a)兆赫輻射時域強度和(b)兆赫輻射頻譜，載子激發密度為 10^{24} 、 10^{25} 、 10^{26} 、 10^{27} 、 10^{28} m^{-3}	10
圖七	區域電場強度與時間關係	10
圖八	電極偏壓作用深度	10
圖九	(a)兆赫輻射訊號極大值與總能量與激發密度關係對數圖(b)兆赫輻射訊號極大值與總能量與激發密度關係線性圖	11
圖十	光導天線輻射和偵測系統實驗架構	11
圖十一	偵測端兆赫波光腰直徑	14
圖十二	偵測天線幾何響應函數	14
圖十三	(a)偵測端取樣時域強度和(b)頻譜，脈衝寬度為 25fs、50fs、100fs、200fs、500fs、1000fs	16
圖十四	(a)偵測端取樣時域強度和(b)頻譜，載子鬆弛時間為 0.1ps、0.2ps、0.5ps、1ps	16
圖十五	(a)偵測端取樣時域強度和(b)頻譜，動量鬆弛時間為 25fs、50fs、100fs、200fs、500fs	17
圖十六	(a)取樣前後兆赫輻射波形(b)取樣前後兆赫輻射頻譜，脈衝寬度 100fs、載子鬆弛時間 500fs、動量鬆弛時間 200fs、動量鬆弛時間 200fs、載子激發密度為 10^{24} m^{-3} 、電場強度為 10^6 V/m	17
圖十七	(a)時域濾波原理(b)頻域濾波原理	19
圖十八	(a)鈦藍寶石鎖模雷射頻譜，頻寬 40nm (b)自相干儀量測訊號，脈衝寬度 125 fs	19
圖十九	零色散脈衝壓縮器和液晶空間光調制器	20
圖二十	Freezing 演算法實驗架構	21
圖二十一	利用 Freezing 演算法壓縮脈衝得到之液晶空間光調制器相位，啾頻量約 -16000 fs^2	23

圖二十二	自相干儀實驗架構	23
圖二十三	脈衝寬度與啾頻關係，回朔雷射頻寬 $43nm$	24
圖二十四	泵探量測實驗架構	25
圖二十五	低溫伸化鎵能隙圖	27
圖二十六	啾頻控制泵探技術量測實驗架構	29
圖二十七	泵探實驗圖，激發密度 $0.05 J/m^2$ 、啾啾量 $\pm 160000 fs^2$	30
圖二十八	低激發密度之低溫伸化鎵能隙圖	31
圖二十九	激發密度 $0.05 J/m^2$ 下，熱載子鬆弛時間，(a)導帶高處至缺陷捕捉時間 τ_1 (b) 導帶高處至導帶底部鬆弛時間 τ_5 (c)導帶底部至缺陷的鬆弛時間 τ_6	32
圖三十	載子捕捉時間 τ_1 與啾頻相依性機制圖	33
圖三十一	熱載子鬆弛時間 τ_5 與啾頻相依性機制圖	34
圖三十二	泵探實驗圖，激發密度 $1.3 J/m^2$ 、啾啾量 $\pm 200000 fs^2$	34
圖三十三	激發密度 $1.3 \sim 3.9 (J/m^2)$ 下，載子由導帶高處至缺陷捕捉時間 τ_1	35
圖三十四	啾頻控制泵探技術量測實驗架構	36
圖三十五	兆赫波時域訊號極大值與啾頻相依性，曲線由下到上為激發能量由 $5mW$ 到 $45mW$	37
圖三十六	模擬兆赫時析光譜系統量測時域訊號極大值和啾頻相依性關係(a)啾頻相依性(b)鬆弛時間相依性	38
圖三十七	兆赫時析光譜系統量測頻譜和啾頻相依性關係(a)實驗結果(b)模擬結果	39
圖三十八	(a)Chung 作出之兆赫時析光譜系統量測頻譜和啾頻相依性關係 [38](b)激發光啾頻量比探測光大 $100000 fs^2$ 時的模擬結果	40
圖三十九	雙光子吸收貢獻之兆赫波時域訊號極大值與啾頻相依性	41
圖四十	(a)雙光子吸收效應減少時域訊號值與啾頻相依性(b)最短脈衝處，雙光子吸收導致時域訊號值下降量與能量關係	42
圖四十一	雙光子吸收導致時域訊號值下降量與能量差關係	42
圖四十二	(a)模擬純單光子吸收效應下時域訊號極大值和(b)總能量，雷射直徑分別為 $2\mu m$ 、 $5\mu m$ 、 $10\mu m$	43
圖四十三	模擬激發直徑 $10\mu m$ 下，時域訊號極大值和總能量比較，(a)純單光子吸收效應(b)綜合雙光子吸收效應及中間能帶再次激發	44
圖四十四	模擬激發直徑 $5\mu m$ 下，時域訊號極大值和總能量比較，(a)純單光子吸收效應(b)綜合雙光子吸收效應及中間能帶再次激發	45

圖四十五	激發光侵入深度，(a)純單光子吸收效應(b)綜合雙光子吸收效應及中間能帶再次激發·····	45
圖四十六	模擬激發直徑 $2\mu m$ 下，時域訊號極大值和總能量比較，(a)純單光子吸收效應(b)綜合雙光子吸收效應及中間能帶再次激發··	46
圖四十七	(a)實驗之兆赫波時域波形對激發能量關係(b)時域訊號極大值和對激發能量關係(c)總能量對激發能量關係·····	47
圖四十八	二維光子晶體兆赫波濾波器·····	49
圖四十九	實驗量測兆赫波濾波器穿透率與啾頻相依性·····	50
圖五十	模擬濾波器中心頻率 $0.4THz$ 時，穿透率與啾頻相依性·····	50
圖五十一	模擬濾波器中心頻率 $1THz$ 時，穿透率與啾頻相依性·····	51
圖五十二	倍頻光源之啾頻控制兆赫輻射時析光譜系統·····	54

第一章 緒論

人類對超快科學的興趣源起於對事物在人眼無法解析微小時間內變化的好奇心，歷史上有關超快科學的最早記載是 Muybridge 和朋友打賭馬匹全速奔跑時必有瞬間四腳離地，1978 年他使用高速攝影機拍攝一序列影像證明他的假設。1930 年代，Edgerton 發明高強度氬氣閃光燈將解析時間提高到微秒，並拍攝子彈打穿蘋果的瞬間和高爾夫揮杆時的序列動作等有趣圖片。1960 年 Maiman 發明紅寶石雷射 [1] 後，機械式閘極將解析時間提高到奈秒。1969 年 Duguay 和 Hansen 利用 Kerr effect 產生皮秒脈衝 [2]。1981 年 Fork 利用碰撞鎖模環形染料雷射產生次皮秒脈衝 [3]，1987 年他利用非線性脈衝壓縮技術產生六飛秒脈衝 [4]。六飛秒脈衝的紀錄保持了將近十年，直到 1990 年代飛秒固態雷射發明後才有進一步發展，1991 年 Spence 利用鈦藍寶石鎖模雷射產生六十飛秒脈衝 [5]，和染料雷射相比，飛秒固態雷射具有高輸出功率、高穩定性和物理機制可產生更短脈衝等優點。1999 年 Sutter 直接由鈦藍寶石鎖模雷射產生六飛秒脈衝 [6]。

相應於產生超短脈衝，脈衝形變技術也不斷發展，1970 年代有許多脈衝形變方法被提出，包含利用 Pockel cell [7]、強度相關濾波器 [8] 等。現在廣泛利用的頻譜空間展開搭配傅利葉合成法調變光脈衝源起

於 1973 年 Desbois 利用雙光柵將光頻譜對空間展開作次奈秒脈衝形變 [9]。其後 Heritage 和 Weiner 合作於 1985 年完成皮秒脈衝形變 [10-12]、1988 年提出零色散脈衝壓縮器(zero dispersion pulse compressor or 4f system)並利用固定式光罩作次皮秒脈衝形變 [13]。光罩具有製作麻煩且每個光罩只能產生一種脈衝波形的缺點，1990 年 Weiner 利用液晶空間光調製器取代光罩 [14]。此外，1991 年 Heritage 利用可變形反射鏡取代光罩 [15]，1994 年 Hillegas 利用聲光調製器取代光罩 [16]，1997 年 Tournois 利用聲光調製器直接在時域形變脈衝 [17]，免除架設零色散脈衝壓縮器。現在光脈衝形變廣泛應用在量子調控、非線性光學、生醫影像量測、光通訊系統等領域。

本論文利用鎖模光源相位調變對材料激發產生兆赫波之同調控製相依性做研究，兆赫波泛指頻率介於 0.1 兆赫至 10 兆赫之電磁頻譜，此波段包含分子轉動和振動能階、半導體材料束縛能、聲子震盪等重要物理現象，但兆赫波段位於電子元件產生之低頻和光學技術產生之高頻間，早期欠缺可調、穩定、高頻寬、高功率之光源。1975 年 Auston 和 1977 年 Lee 利用光致電導閥產生皮秒電脈衝 [18-19]。1981 年 Mourou 利用光致電導閥之電脈衝激發天線產生輻射 [20]。1988 年 Smith 利用飛秒脈衝激發光導天線產生輻射，頻譜可達一兆赫以上 [21]。1989 年 Exter 設計天線結構匹配兆赫輻射傳播模以提高天線輻

射效率，並提出兆赫輻射時析光譜技術量測兆赫頻譜 [22-23]。在光導材料研製上，光導材料需具短鬆弛時間、高載子飄移率和高阻抗特性，1981 年 P. Smith 研製出輻射損傷矽藍寶石(RDSOS) [24]，1988 年 F. Smith 研製出低溫砷化鎵(LT-GaAs) [25]。其他產生兆赫輻射之方法包括，1970 年 Yajima 利用非線性晶體光整流效應產生兆赫輻射[26]。1987 年 Rodwell 利用全電子式非線性傳輸線產生兆赫輻射[27]。1990 年 Darrow 利用大孔徑光導天線產生高功率、大面積兆赫輻射 [28]，Zhang 利用半導體表面電流產生兆赫輻射 [29]。1991 年 Leo 利用非對稱量子井同調震盪產生兆赫輻射 [30]。1993 年 Brown 利用光混頻產生連續波兆赫輻射 [31]。1995 年 Dekorsy 利用聲子震盪產生兆赫輻射 [32]，Hangyo 利用高溫超導天線產生兆赫輻射 [33]。1997 年 Kersting 利用電漿震盪產生兆赫輻射 [34]，1998 年 Tani 利用聲子和電漿耦合震盪模產生兆赫輻射 [35]。

至今天，利用光導天線產生與偵測兆赫輻射變成普遍方法，光導天線具有高效率和高訊噪比之優點，透過設計天線幾何結構、改變材料特性可增加兆赫輻射強度 [36]，或可經多脈衝激發調控區域頻率放大 [37]，2005 年 Chung 利用同調控制技術調變兆赫輻射時析光譜系統發現天線輻射強度、頻譜寬度與脈衝啁啾量具相依性，正啁啾激發比負啁啾可產生較強輸出與較寬頻寬，且適量正啁啾可產生最強輸出與最

寬頻寬 [38-39], Chung 的結果隱含脈衝相位與半導體載子動力學的交流作用，本論文接續其研究，利用鎖模光源相位調變對材料激發產生兆赫波之同調控制機制做研究。本論文於第二章介紹光導天線輻射與接收原理、第三章說明實驗技術與樣品、第四章討論實驗結果、第五章總結實驗結論與未來展望。

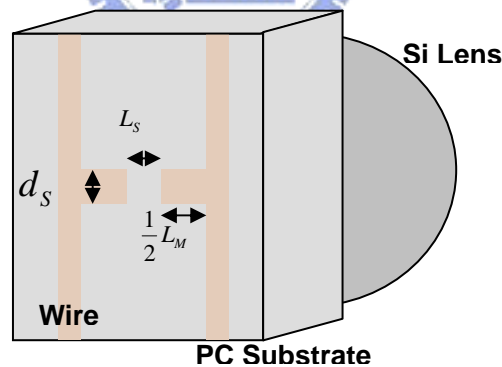


第二章 光導天線輻射與接收原理

本章介紹光導天線輻射、接收原理和特性，結構如下：2.1 - 光導天線輻射原理、2.2 - 光導天線接收原理。

2.1 光導天線輻射原理

光導天線結構如圖一，將具短鬆弛時間、高載子飄移率和高阻抗特性之光導材料長在基板上，上方再覆蓋平行傳輸線和偶極天線，基板背後貼上矽透鏡增加輻射收集效率。輻射原理為將能量大於能隙之脈衝打在天線缺口使電子和電洞激發至導帶，激發載子經由天線偏壓加速產生時變光電流輻射出兆赫波。



圖一 光導天線基本結構

本論文使用 Drude-Lorentz 模型模擬光導天線輻射和接收兆赫波之機制與頻譜 [40-43]，能量大於能隙之光脈衝打在天線缺口上，其激發載子密度與時間關係可表示成：

$$\frac{dn(t)}{dt} = -\frac{n(t)}{\tau_c} + G(t) \quad (1)$$

其中 $n(t)$ 代表激發載子密度、 τ_c 代表載子鬆弛時間、 $G(t)$ 代表載子產生速率，載子產生速率和脈衝強度有關，數學形式為：

$$G(t) = n_0 e^{-2\left(\frac{t^2}{\delta t^2}\right)} \quad (2)$$

其中 n_0 代表 $t=0$ 時載子產生速率、 δt 代表脈衝寬度。激發載子經由天線偏壓加速後，其速度與時間關係為：

$$\frac{dv_{e,h}(t)}{dt} = -\frac{v_e(t)}{\tau_s} + \frac{q_{e,h}}{m_{e,h}^*} E(t) \quad (3)$$

其中 $v_{e,h}(t)$ 、 $q_{e,h}$ 、 $m_{e,h}^*$ 分別代表電子或電洞之速度、電量和有效質量， τ_s 代表動量鬆弛時間、 $E(t)$ 代表電場強度。在屏蔽效應作用下，電場強度與時間關係為：

$$E(t) = E_{bias} - \frac{P(t)}{\alpha \epsilon} \quad (4)$$

其中 E_{bias} 代表天線偏壓之電場強度、 $P(t)$ 代表極化密度、 α 代表光導天線結構遮罩常數、 ϵ 代表光導材料介電常數。極化密度與時間關係為：

$$\frac{dP(t)}{dt} = -\frac{P(t)}{\tau_r} + J(t) \quad (5)$$

其中 τ_r 代表極化鬆弛時間、 $J(t)$ 代表光電流密度，其與時間關係為：

$$J(t) = en(t)[v_h(t) - v_e(t)] = en(t)v(t) \quad (6)$$

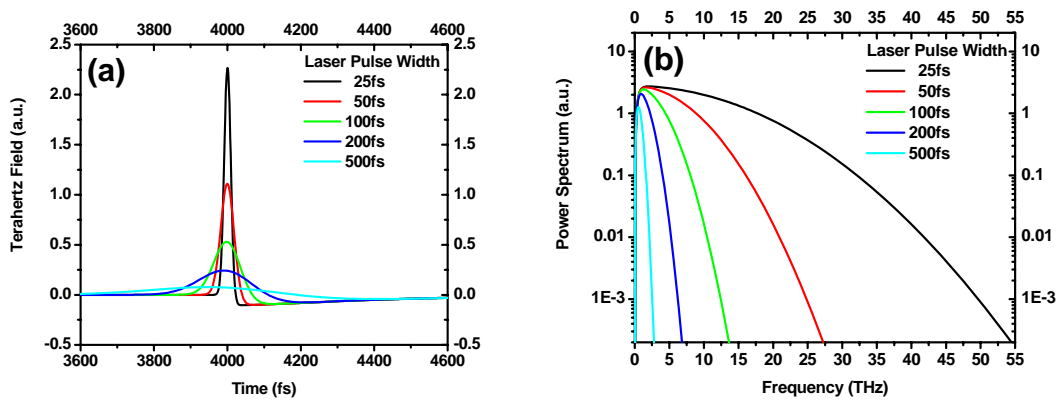
$v(t)$ 代表電洞與電子相對速度。對於簡單之 Hertzian 天線，其遠場輻射 $E_{THz}(t)$ 可表示成：

$$E_{THz}(t) \propto \frac{dJ(t)}{dt} = ev(t)\frac{dn(t)}{dt} + en(t)\frac{dv(t)}{dt} \quad (7)$$

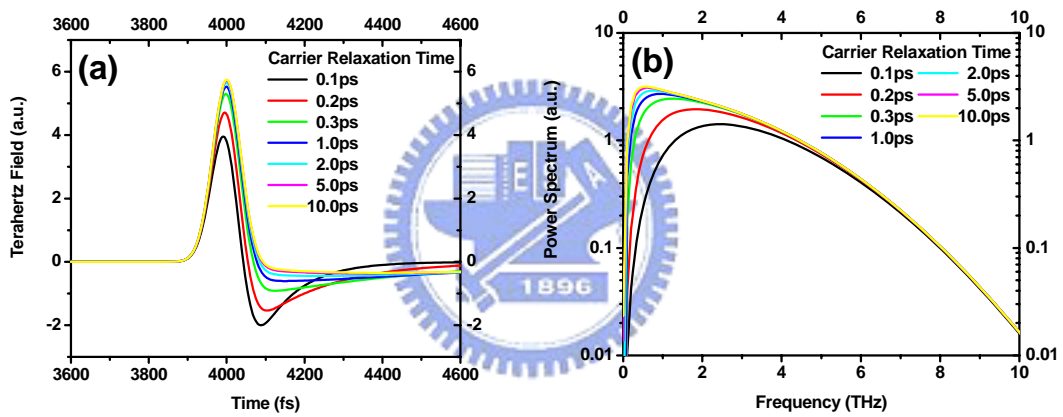
上式第一項和第二項分別表示載子密度改變和速度改變所造成之輻射變化。在其他參數固定條件下，藉由調變一個參數可觀察此參數對兆赫輻射能量和頻譜之影響，參數如表一。脈衝寬度下降，頻譜向高頻延伸，低頻維持不變，整體能量上升(如圖二)。載子鬆弛時間增加，低頻能量增加，高頻維持不變(如圖三)。動量鬆弛時間上升、偏壓電場增加，整體頻譜能量增幅(如圖四、圖五)。由上可知，當系統具有短脈衝寬度，長載子鬆弛時間、長動量鬆弛時間和高偏壓電場時，可最佳化兆赫輻射輸出，具有高能量和寬頻特性。

表一 模擬兆赫輻射相關參數對照表

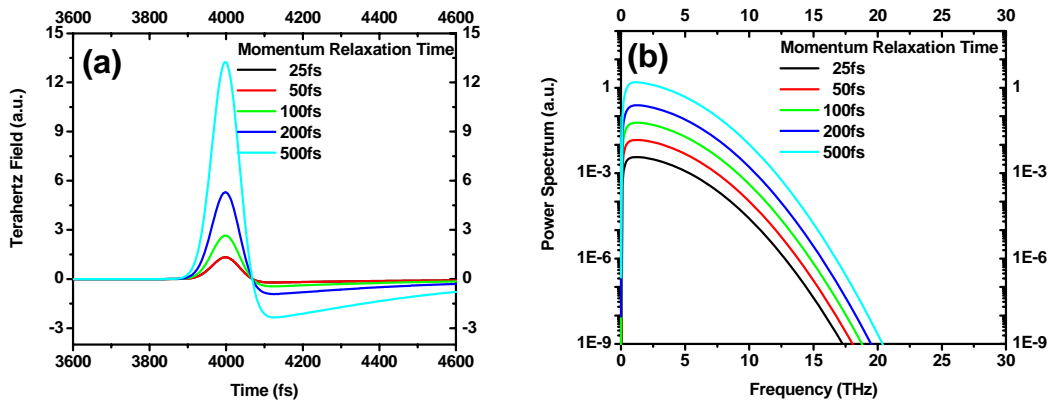
脈衝寬度 = 100 fs	電場強度 = $10^6 V/m$
載子鬆弛時間 = 500 fs	電子質量 = $0.067 \times 9.11 \times 10^{-31} kg$
動量鬆弛時間 = 200 fs	幾何結構因子 = 900
極化鬆弛時間 = 10 ps	折射率 = 3.6
激發密度 = $10^{24} m^{-3}$	



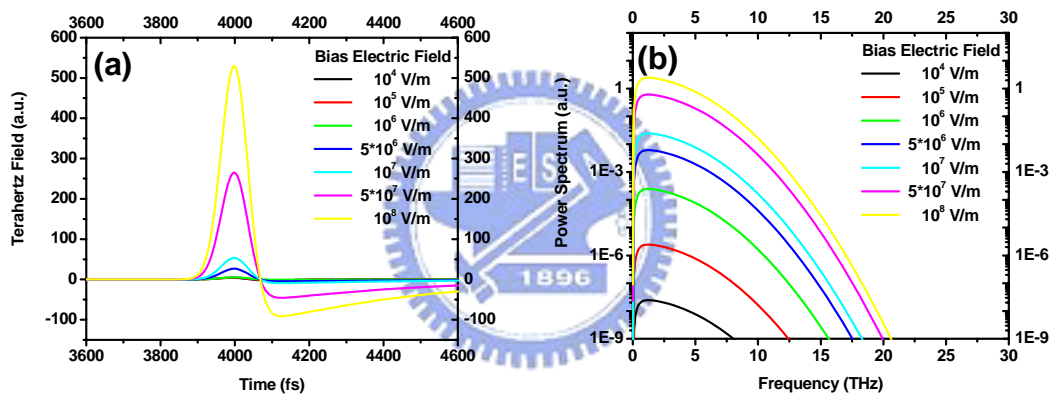
圖二 (a)兆赫輻射時域強度和(b)兆赫輻射頻譜，脈衝寬度為
25fs、50fs、100fs、200fs、500fs



圖三 (a)兆赫輻射時域強度和(b)兆赫輻射頻譜，載子鬆弛時間
為 0.1ps、0.2ps、0.5ps、1ps、2ps、5ps、10ps



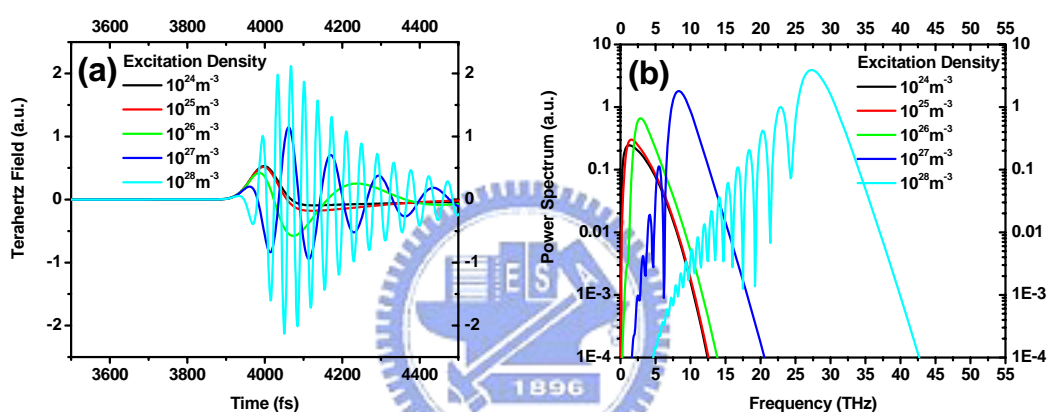
圖四 (a)兆赫輻射時域強度和(b)兆赫輻射頻譜，動量鬆弛時間為 25fs、50fs、100fs、200fs、500fs



圖五 (a)兆赫輻射時域強度和(b)兆赫輻射頻譜，電場偏壓強度為 10^4 、 10^5 、 10^6 、 $5 \cdot 10^6$ 、 10^7 、 $5 \cdot 10^7$ 、 10^8 V/m

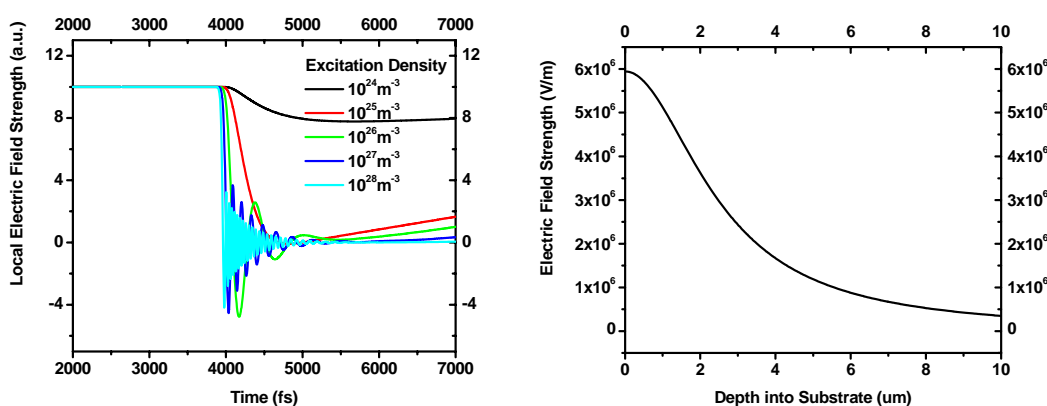
激發密度上升，輻射波形開始產生震盪，頻譜向高頻位移(如圖六)。波形震盪來自電場屏蔽效應 [44-45]，當激發密度增加，區域電場快速被激發載子產生之極化抵消，但激發載子在抵消當下仍具動量持續飄移產生光電流，光電流使極化持續增加產生反向電場驅動激發載子反向加速(如圖七)，激發載子被區域電場來回驅動震盪，產生高

頻兆赫輻射。理論上利用電場屏蔽效應能產生高頻兆赫輻射，但價帶電子吸收能量躍遷至導帶底部之總數被材料所限制，通常激發密度只到 $5 \times 10^{24} m^{-3}$ ，無法達到屏蔽效應所需密度。除激發飽和限制天線輻射強度外，電場作用深度也限制輻射強度(如圖八)，高入射能量使激發光穿透深度增加，但電場作用深度無法改變，多餘載子不再經由偏壓加速，整體兆赫輻射能量趨向飽和(如圖九)。



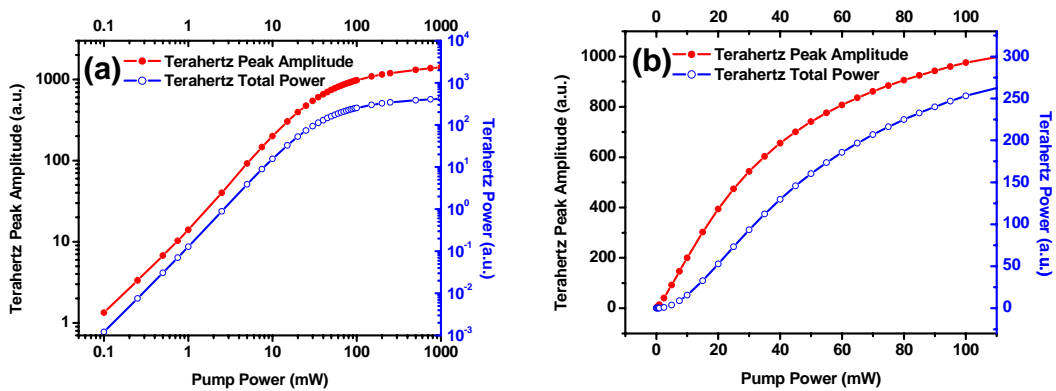
圖六 (a)兆赫輻射時域強度和(b)兆赫輻射頻譜，載子激發密度

為 10^{24} 、 10^{25} 、 10^{26} 、 10^{27} 、 $10^{28} m^{-3}$



圖七 區域電場強度與時間關係

圖八 電極偏壓作用深度

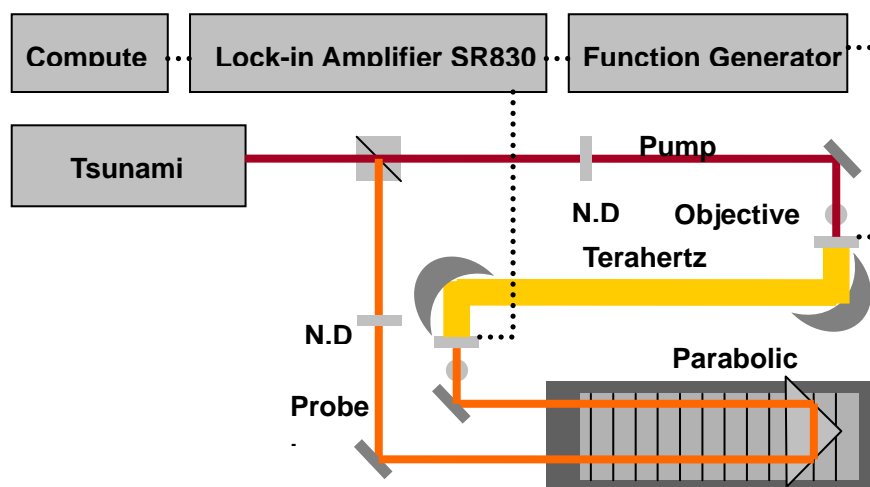


圖九 (a)兆赫輻射訊號極大值與總能量與激發密度關係對數圖

(b)兆赫輻射訊號極大值與總能量與激發密度關係線性圖

2.2 光導天線接收原理

光導天線輻射和偵測實驗架構如圖十，脈衝經由分光鏡分光，一道脈衝激發光導天線輻射兆赫波，兆赫波先經過一對拋物面鏡增加收集效率再經由矽透鏡聚焦至偵測天線上，另一道延遲脈衝激發偵測端光導天線紀錄光電流資訊，透過光電流資訊可得兆赫波資訊，此架構稱兆赫輻射時析光譜系統(THz-TDS)。



圖十 光導天線輻射和偵測系統實驗架構

兆赫波經過拋物面鏡和矽透鏡聚焦至偵測天線過程的傳播矩陣

可表示成：

$$M_{propagation} = \begin{bmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ \frac{1-n}{nR} & \frac{1}{n} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} -1 & 0 \\ \frac{\Delta-2}{f} & -1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \quad (8)$$

$$= \begin{bmatrix} \frac{fd(n-1) + Rd(\Delta-2)}{Rnf} - 1 & -\frac{d}{n} \\ \frac{f(n-1) + R(\Delta-2)}{Rnf} & -\frac{1}{n} \end{bmatrix}$$

其中 f 代表拋物面鏡焦距、 Δ 代表拋物面鏡間距與焦距比例、 n 代表矽透鏡折射率、 R 代表矽透鏡曲率、 d 代表矽透鏡厚度。假設激發天線處之兆赫波為平面波，則偵測端之兆赫波光腰可表示成：

$$\frac{1}{q_{out}} = \frac{1}{R_{out}} - i \frac{\lambda}{\pi \omega_{out}^2} = \frac{C + D \frac{1}{q_{in}}}{A + B \frac{1}{q_{in}}} = \frac{C - iD \frac{\lambda}{\pi \omega_0^2}}{A - B \frac{\lambda}{\pi \omega_0^2}} \quad (9)$$

$$\omega_{out}(\lambda) = \sqrt{-\frac{\lambda}{\pi} \text{Im} \left[\frac{A - iB \frac{\lambda}{\pi \omega_0^2}}{C - iD \frac{\lambda}{\pi \omega_0^2}} \right]} \quad (10)$$

其中 ω_0 代表輻射兆赫波之光腰、 λ 代表兆赫波波長、 ω_{out} 代表偵測端之兆赫波光腰，則兆赫波之總能量可表示成下式：

$$P_{THz} = \frac{1}{2} c \epsilon_0 \iint_{-\infty-\infty}^{\infty} E^2(x, y) dx dy = \frac{1}{2} c \epsilon_0 \iint_{-\infty-\infty}^{\infty} E_0 e^{-\frac{x^2+y^2}{\omega_{out}^2}} dx dy = \frac{1}{2} \pi \omega_{out}^2 c \epsilon_0 E_0^2 \quad (11)$$

$$E_0 = \frac{2}{\omega_{out}} \sqrt{\frac{P_{THz}}{\pi c \epsilon_0}} \quad (12)$$

偵測端之兆赫波取樣須考慮天線結構和幾何響應函數

(Geometrical Response Function, GRF)，偶極天線結構如圖一，其

中 L_S 代表天線開長度、 L_M 代表金屬導線長度、 d_S 代表天線開寬度。

偵測端之組抗可表示為：

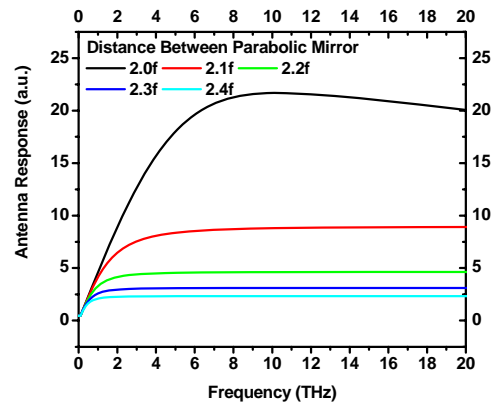
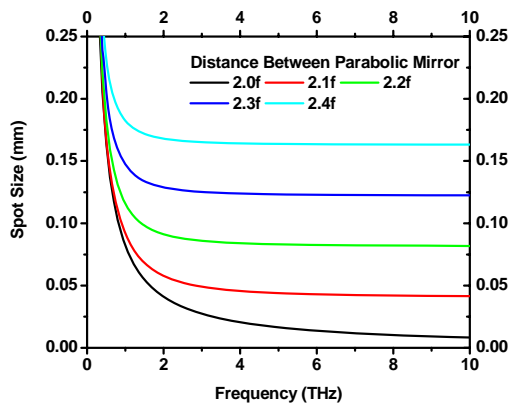
$$R = \frac{\rho_M L_M + \rho_S L_S}{td_S} \approx \frac{\rho_S L_S}{td_S} \quad (13)$$

其中 ρ_S 代表天線開處組抗、 ρ_M 代表金屬導線組抗，因為脈衝寬度遠小於雷射脈衝間距，因此天線開處組抗 ρ_S 遠大於金屬導線組抗 ρ_M 。天線開處組抗 ρ_S 與雷射能量 P_{laser} 關係為：

$$\rho_S = \frac{L_S d_S}{\xi \mathcal{P}_{laser}} \quad (14)$$

其中 ξ 代表激發載子轉換效率。則偵測天線之幾何響應函數可表示為：

$$\begin{aligned} I &= \frac{V}{R} = \frac{\bar{E}(L_M + L_S)}{L_S^2} t \xi \mathcal{P}_{laser} \\ &= \frac{(L_M + L_S)}{L_S^2} t \xi \mathcal{P}_{laser} \frac{1}{L d_S} \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} \int_{-\frac{M}{2}}^{\frac{M}{2}} E(x, y) dx dy \\ &= \frac{t \xi \mathcal{P}_{laser}}{L_S^2 d_S} \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} \int_{-\frac{M}{2}}^{\frac{M}{2}} E_0 e^{-\frac{(x^2+y^2)}{\omega_{out}^2(v)}} dx dy \\ &= \frac{t \xi \mathcal{P}_{laser} E_0 \pi \omega_{out}^2}{L_S^2 d_S} \text{Erf}\left[\frac{L}{2\omega_{out}}\right] \text{Erf}\left[\frac{d_S}{2\omega_{out}}\right] \\ &= \frac{2t \xi \mathcal{P}_{laser} \pi \omega_{out}}{L_S^2 d_S} \sqrt{\frac{P_{THz}}{\pi c \epsilon_0}} \text{Erf}\left[\frac{L}{2\omega_{out}}\right] \text{Erf}\left[\frac{d_S}{2\omega_{out}}\right] \end{aligned} \quad (15)$$



圖十一 偵測端兆赫波光腰直徑 圖十二 偵測天線幾何響應函數

圖十一、十二分別為利用表二參數所計算兆赫波在偵測天線端之光腰和幾何響應函數。

表二 模擬兆赫輻射時析光譜系統參數表

輻射端兆赫波光腰 = 12mm	矽透鏡到天線距 = 9.54mm
拋物面鏡焦距 = 7.6cm	天線閘長度 = 5um
折射率 = 3.42	金屬導線長度 = 25um
矽透鏡焦距 = 6.75mm	天線閘寬度 = 5um

經由幾何響應函數作用，兆赫波波形和頻譜隨之改變，關係如下式：

$$v_d(t) \sim \int H(\omega) E_{THz}(\omega) e^{j\omega t} d\omega \quad (16)$$

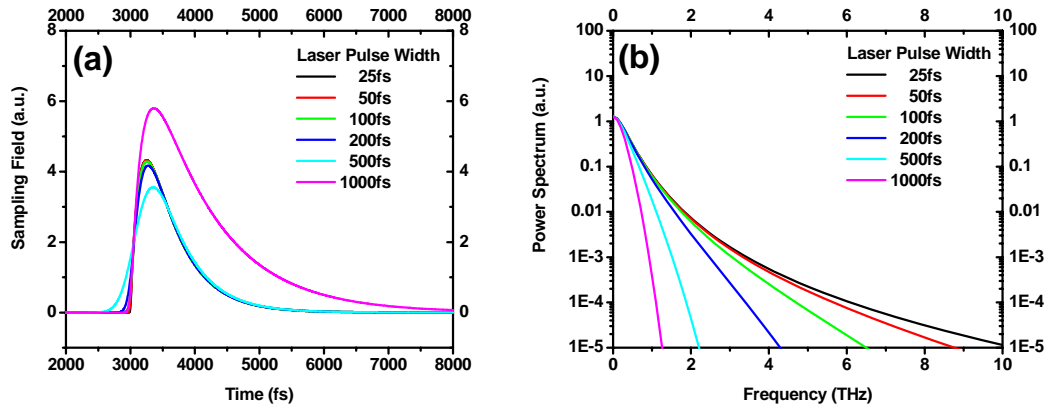
其中 $H(\omega)$ 代表幾何響應函數、 $v_d(t)$ 代表兆赫波轉換至偵測端波形。延遲光脈衝打在光導天線上可產生自由載子和導電率，數學形式為：

$$g(t) = \int_0^t G(t') (1 - e^{-\frac{t-t'}{\tau_s}}) e^{-\frac{t-t'}{\tau_c}} dt' \quad (17)$$

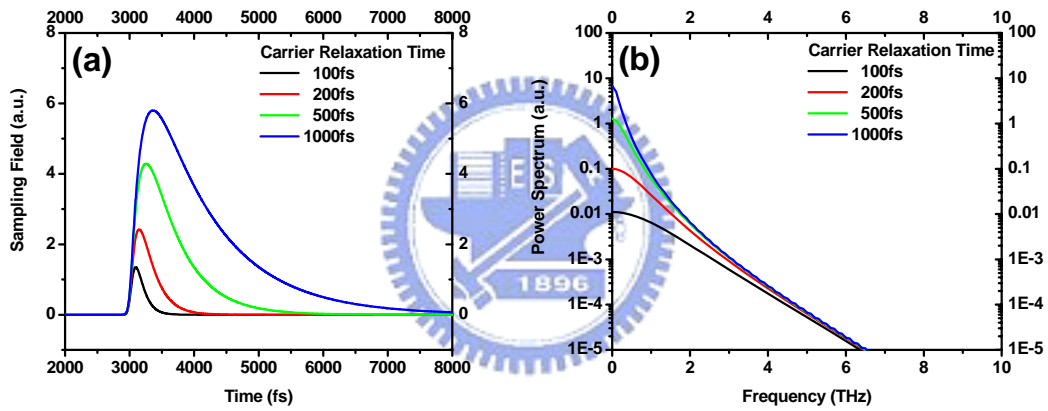
其中 τ_c 代表載子鬆弛時間、 τ_s 代表動量鬆弛時間、 $G(t)$ 代表載子產生速率、 $g(t')$ 代表導電率，則偵測端量得之光電流 $I_d(\tau)$ 與偵測端波形 $v_d(t)$ 關係為：

$$I_d(\tau) \propto \int v_d(t) g(t-\tau) dt \quad (18)$$

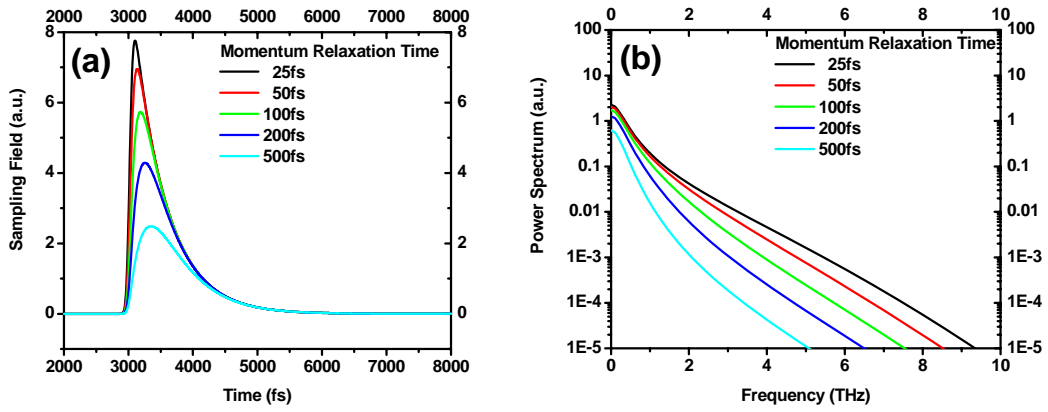
在其他參數固定條件下，藉由調變一個參數可觀察此參數對兆赫輻射偵測之影響和響應，參數表同表一。當脈衝寬度下降，偵測端取樣頻譜向高頻延伸，低頻維持不變（如圖十三）。載子鬆弛時間增加，低頻能量增加，高頻維持不變（如圖十四）。動量鬆弛時間上升、高低頻能量皆降低，頻率越高下降速度越快（如圖十五）。圖十六為兆赫輻射在取樣前後的比較，兆赫輻射在取樣後明顯的時域寬度增加，頻譜寬度下降，若不考慮量得偵測端光電流能量，為精確取樣兆赫輻射波形和頻譜，取樣波形最好為 Dirac 函數，意味著取樣頻寬度越大越好，因此系統在脈衝寬度短、載子鬆弛時間短、動量鬆弛時間短的取樣條件下較能精準取樣出兆赫輻射波形和頻譜。



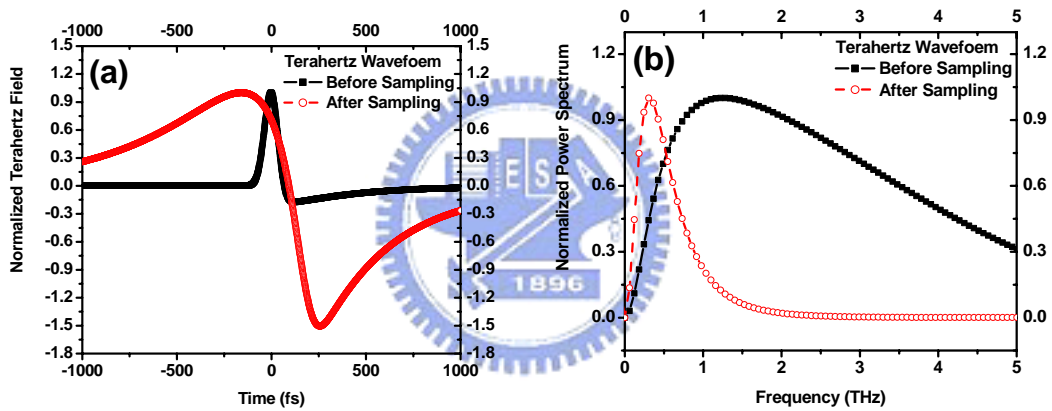
圖十三 (a)偵測端取樣時域強度和(b)頻譜，脈衝寬度為 25fs、50fs、100fs、200fs、500fs、1000fs



圖十四 (a)偵測端取樣時域強度和(b)頻譜，載子鬆弛時間為 0.1ps、0.2ps、0.5ps、1ps



圖十五 (a)偵測端取樣時域強度和(b)頻譜，動量鬆弛時間為
25fs、50fs、100fs、200fs、500fs



圖十六 (a)取樣前後兆赫輻射波形(b)取樣前後兆赫輻射頻譜，脈衝寬
度 100fs、載子鬆弛時間 500fs、動量鬆弛時間 200fs、動量鬆弛時間
200fs、載子激發密度為 $10^{24} m^{-3}$ 、電場強度為 $10^6 V/m$


第三章 實驗技術與樣品

本章介紹光脈衝形變系統、演算法和脈衝量測方法，結構如下：

3.1-光脈衝形變、3.1.1-光脈衝形變系統、3.1.2-光脈衝形變演算法、
3.1.3-自相干儀、3.2-泵探量測技術、3.3-低溫砷化鎵材料特性

3.1 光脈衝形變

脈衝形變可由電子信號中之線性、不隨時間變化之濾波原理描述，濾波原理可在時域或頻域解釋，如圖十七。脈衝入射濾波系統後，輸出脈衝的數學形式可表示成：

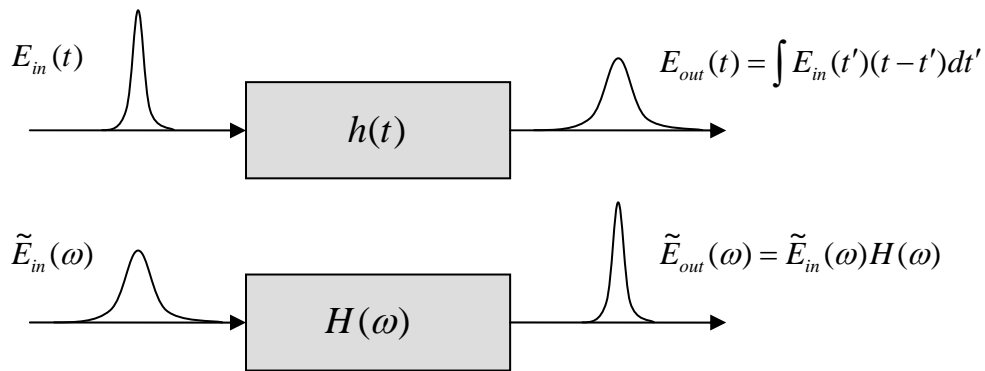

$$E_{out}(t) = E_{in}(t) \otimes h(t) = \int E_{in}(t')h(t-t')dt' \quad (19)$$

其中 $E_{in}(t)$ 代表入射脈衝、 $E_{out}(t)$ 代表輸出脈衝、 $h(t)$ 代表濾波系統脈衝響應函數、 \otimes 代表捲積(convolution)，Tournois 利用此原理搭配聲光調製器形變脈衝 [17]。脈衝形變也可在頻域解釋，脈衝頻率響應入射濾波系統後，輸出脈衝頻率響應可表示成：

$$\tilde{E}_{out}(\omega) = \tilde{E}_{in}(\omega)H(\omega) \quad (20)$$

其中 $\tilde{E}_{in}(\omega)$ 代表入射脈衝頻率響應、 $\tilde{E}_{out}(\omega)$ 代表輸出脈衝頻率響應、 $H(\omega)$ 代表濾波系統頻率響應， $\tilde{E}_{in}(\omega)$ 、 $\tilde{E}_{out}(\omega)$ 、 $H(\omega)$ 分別是 $E_{in}(t)$ 、 $E_{out}(t)$ 、 $h(t)$ 的傅利葉轉換。當知道入射頻率響應和形變後的頻率響應便可得到濾波系統的頻率響應，此方法具有簡單和直觀

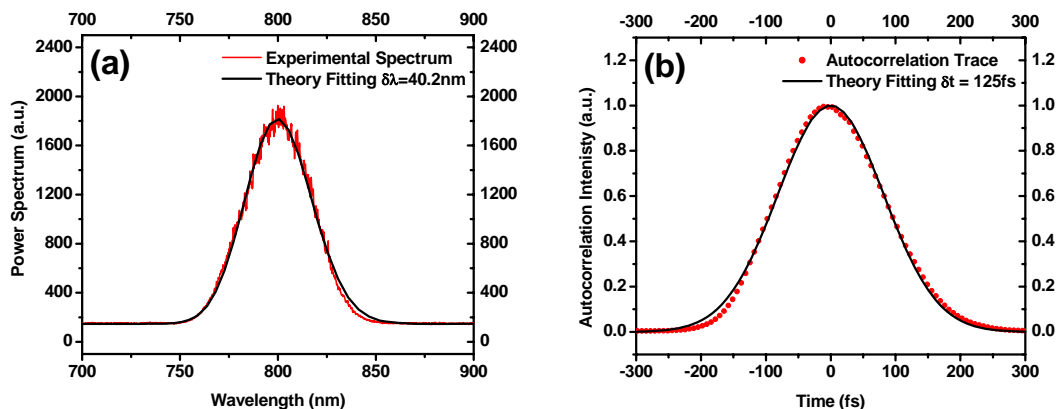
的優點，Weiner [14]、Heritage [15]和 Hillegas [16]利用此原理搭配
 頻譜於空間展開之技術形變脈衝。



圖十七 (a)時域濾波原理(b)頻域濾波原理

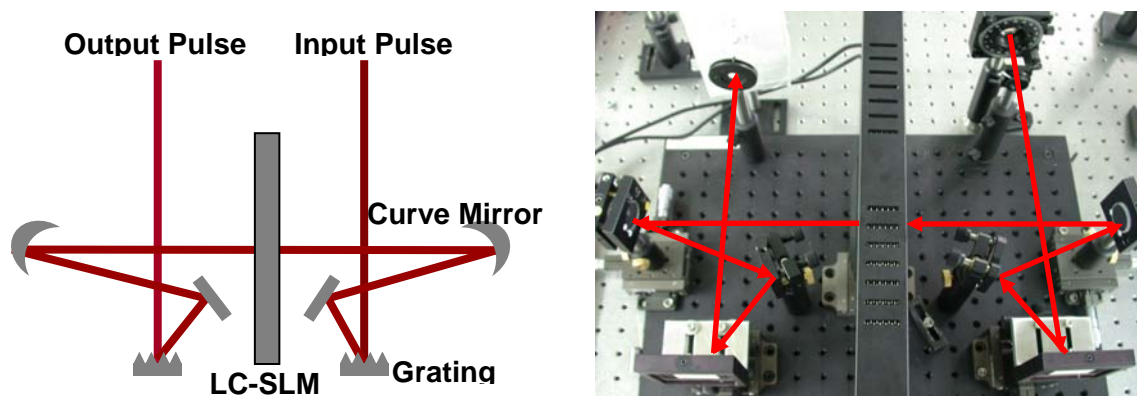
3.1.1 光脈衝形變系統

本論文使用鈦藍寶石雷射(Ti: Sapphire Laser)當脈衝光源
 (Tsunami, Spectra-Physics)，頻譜中心波長 $800nm$ ，頻寬 $40nm$ ，脈
 衝寬度約 $100fs$ ，重覆率 $82MHz$ ，圖十八為鈦藍寶石鎖模雷射的頻譜
 和自相干量測信號。



圖十八 (a)鈦藍寶石鎖模雷射頻譜，頻寬 $40nm$ (b)自相干儀量
 測訊號，脈衝寬度 $125fs$

脈衝形變基本架構如圖十九，包含一對繞射光柵、一對透鏡和可調強度或相位的光罩。入射脈衝打到光柵上，光柵將不同頻率的光隨角度繞射開，將透鏡放置在一倍焦距的地方，使不同頻率的光平行輸出，在距離透鏡一倍焦距的地方，不同頻率的光將會隨位置作一維展開，此平面稱作傅氏平面，在此平面放上可調強度或相位的光罩形變脈衝，另一透鏡放在距傅氏平面一倍焦距地方將光聚焦，在透鏡後一倍焦距地方放置繞射光柵，使各頻率的光重疊共線輸出，此結構稱作零色散脈衝壓縮器 [13]，又因內部架構包含四個透鏡焦距，也稱作4f系統。實驗上使用一對600/mm的繞射光柵、一對焦距20cm的凹面鏡和液晶空間光調製器(LC-SLM, phase mode, Cambridge Research and Instrumentation Inc.)，此處使用凹面鏡取代透鏡以降低色散量。

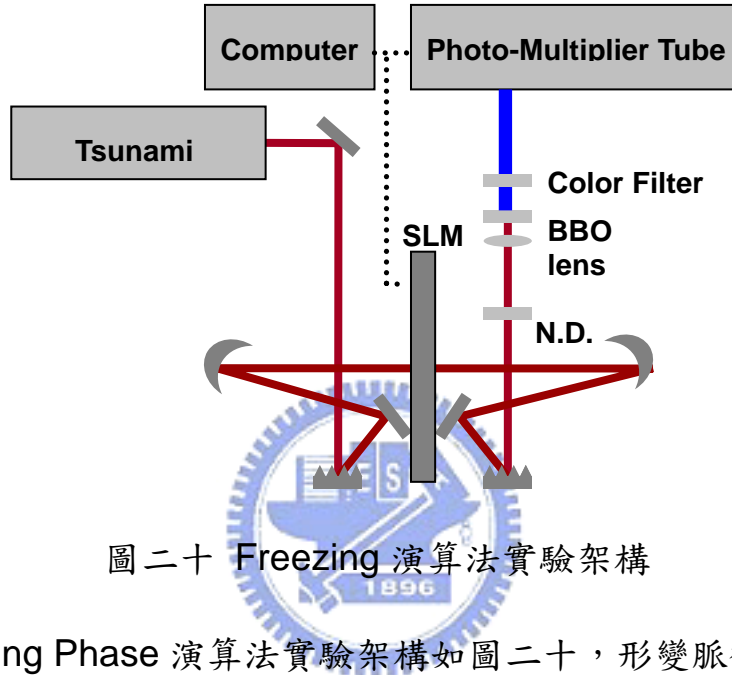


圖十九 零色散脈衝壓縮器和液晶空間光調製器

3.1.2 光脈衝形變演算法

從 1973 年 Desbois 利用雙光柵將光頻譜對空間展開作次奈秒脈

衝形變 [9]後，利用傅利葉合成法(Fourier Synthesis)調變光脈衝成為主要的方法，理論上，設計特定頻率響應函數可產生對應的光脈衝，但實驗上需將原本光脈衝的色散作補償，使各波長的光具有同相位或一階色散，在論文中使用 Freezing Phase 演算法作色散補償 [46]。



圖二十 Freezing 演算法實驗架構

Freezing Phase 演算法實驗架構如圖二十，形變脈衝經過透鏡聚焦在倍頻晶體上，利用光電倍增管讀取倍頻光強度，在演算過程中，將頻譜切成兩塊，一部分相位固定，一部分由液晶空間光調製器逐步疊加相位 θ ，紀錄光電倍增管強度達到訊號最大值。脈衝頻域電場可表示成：

$$\tilde{E}(\omega)e^{j\phi(\omega)} = \tilde{E}_1(\omega)e^{j\phi_1(\omega)} + \tilde{E}_2(\omega)e^{j\phi_2(\omega)}e^{j\theta} \quad (21)$$

其中 $\tilde{E}(\omega)$ 表示頻域強度、 $\phi(\omega)$ 表示頻域相位， $\tilde{E}_1(\omega)$ 、 $\tilde{E}_2(\omega)$ 分別表示兩部分頻域強度， $\phi_1(\omega)$ 、 $\phi_2(\omega) + \theta$ 分別表示兩部分頻域相位。而時域電場可表示成：

$$E(t)e^{j\varphi(t)} = E_1(t)e^{j\varphi_1(t)} + \tilde{E}_2(t)e^{j\varphi_2(t)}e^{j\theta} \quad (22)$$

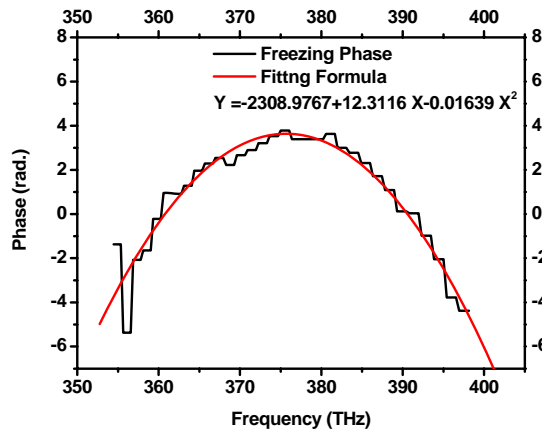
$$E_1(t)e^{j\varphi_1(t)} = I.F.T\{\tilde{E}_1(\omega)e^{j\phi_1(\omega)}\} \quad (23)$$

$$E_2(t)e^{j\varphi_2(t)}e^{j\theta} = I.F.T\{\tilde{E}_2(\omega)e^{j\phi_2(\omega)}e^{j\theta}\} \quad (24)$$

其中 $E(t)$ 表示時域強度、 $\varphi(t)$ 表示時域相位， $E_1(t)$ 、 $E_2(t)$ 分別表示兩部分時域強度， $\varphi_1(t)$ 、 $\varphi_2(t) + \theta$ 分別表示兩部分時域相位。光電倍增管讀取到之信號正比於脈衝倍頻之時間積分，其數學形式為：

$$\begin{aligned} I_{total} &\propto \int I_{PMT}(t) dt \quad (25) \\ &\propto \int \left| E_1^2(t)e^{j2\varphi_1(t)} + E_2^2(t)e^{j2[\varphi_2(t)+\theta]} + 2E_1(t)E_2(t)e^{j[\varphi_1(t)+\varphi_2(t)+\theta]} \right|^2 dt \\ &\propto \int E_1^4(t) + E_2^4(t) + 2E_1^2(t)E_2^2(t) dt \\ &\quad + \int 4E_1(t)E_2(t) \left[E_1^2(t) + E_2^2(t) \right] \text{Cos}[\varphi_1(t) - \varphi_2(t) - \theta] dt \\ &\quad + \int 2E_1^2(t)E_2^2(t) \text{Cos}[2(\varphi_1(t) - \varphi_2(t) - \theta)] dt \end{aligned}$$

從式(25)知，回授過程中逐步調整疊加相位 θ ，並將訊號最大值之 θ 取出之意義等同讓脈衝同相位，重覆頻譜切割步驟逐步調變各部份頻域相位最終將達到最短脈衝輸出。圖二十一為正色散125fs脈衝經過 Freezing Phase 演算法壓縮脈衝後，液晶空間光調制器上得到之負色散相位。

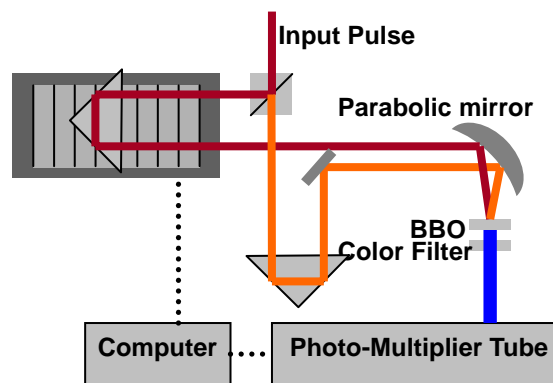


圖二十一 利用 Freezing 演算法壓縮脈衝得到之液晶空間光調

制器相位，啾頻量約 $-16000 fs^2$

3.1.3 自相干儀(Autocorrelator)

為獲得脈衝完整資訊，需量測時域電場強度和相位抑或是量測頻域電場強度和相位。在 70 和 80 年代，量測脈衝資訊主要依靠光譜儀和自相干儀 [47-48]。光譜儀可量測頻域電場強度但無法得到頻域相位，而自相干儀可量測部份時域電場強度資訊。



圖二十二 自相干儀實驗架構

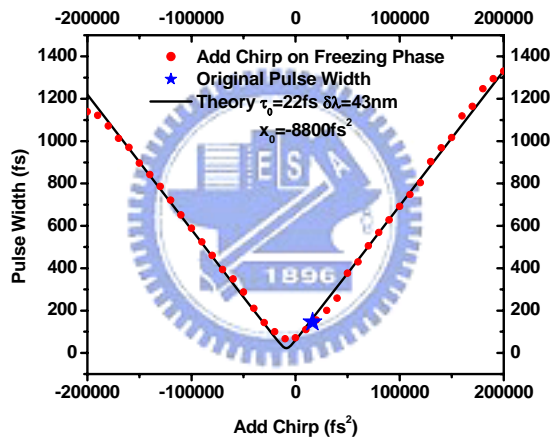
自相干儀結構如圖二十二，入射光經由分光鏡分光，兩道脈衝間有可調光程差經由拋物面鏡斜向重疊聚焦在非線性介質上(通常使用

倍頻晶體)，當兩道脈衝在時域上重疊會產生倍頻光，而在時域不重疊時沒有光產生，典型倍頻式自相干儀信號與脈衝關係為：

$$A(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t-\tau)dt \quad (26)$$

上述 τ 代表脈衝間光程差。量測之倍頻訊號會模糊脈衝強度資訊，因此需假設脈衝形狀才可得到脈衝寬度，若脈衝形狀為高斯函數，則量測之自相干訊號與脈衝半高寬 w 關係為：

$$A(\tau) = e^{-\frac{2\sqrt{\ln 2}\tau}{w}} \quad (27)$$



圖二十三 脈衝寬度與啾頻關係，回朔雷射頻寬 $43nm$

圖二十三為利用液晶空間光調制器疊加啾頻後，藉由自相干儀量得脈寬與啾頻關係，理論上脈衝寬度與啾頻關係為：

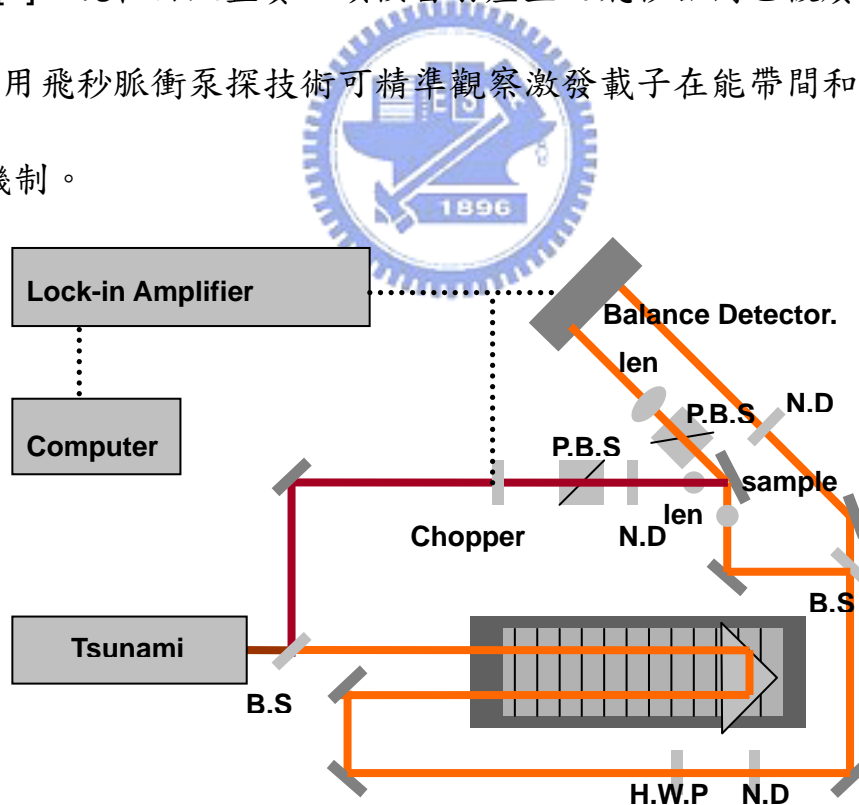
$$w = \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{4\ln 2 \frac{b}{2\pi^2}}{\tau_0^2}\right)^2} \quad (28)$$

其中 τ_0 代表最短脈衝寬度、 b 代表雷射啾頻量，在此處使用之啾頻量與群速度色散值差 $2\pi^2$ 倍。透過脈寬與啾頻關係可驗證零色散脈

衝壓縮器之效能和驗證雷射頻寬，此處回朔得到雷射頻寬為 43nm 。

3.2 泵探量測技術

泵探技術源起於人類對事物在人眼無法解析微小時間內變化的好奇心，此技術利用先行光脈衝激發樣品，再用另一延遲時間光脈衝觀察樣品隨時間序列變化，泵探技術精準度由光脈衝寬度和延遲時間準度所決定。1930 年代 Edgerton 發明高強度氬氣閃光燈將解析時間提高到微秒，1969 年 Duguay 和 Hansen 利用 Kerr effect 產生皮秒脈衝 [2]，現在由鈦藍寶石鎖模雷射產生之飛秒脈衝已被廣泛利用 [6]，利用飛秒脈衝泵探技術可精準觀察激發載子在能帶間和能帶內之運動機制。



圖二十四 泵探量測實驗架構

泵探量測基本架構如圖二十四，分光鏡將入射脈衝分成激發光與

探測光，樣品中之基態載子吸收激發光能量躍遷至導帶，因為電子組態改變導致樣品折射率產生變化，再利用延遲時間之探測光讀取不同延遲時間，樣品穿透率和反射率變化。樣品反射率可表示成：

$$R_0 = \left(\frac{n_0 - 1}{n_0 + 1} \right)^2 \quad (29)$$

其中 n_0 代表樣品折射率、 R_0 代表樣品反射率，則反射率變化與折射率變化關係為：

$$\frac{dR(t)}{R_0} = \frac{2 \left(\frac{n_0 - 1}{n_0 + 1} \right) \frac{2dn}{(n_0 + 1)^2}}{\left(\frac{n_0 - 1}{n_0 + 1} \right)^2} = \frac{4dn(t)}{n^2 - 1} \quad (30)$$

通常樣品穿透率和反射率變化只有萬分之一到千分之一，因此泵探系統需使用半波片和極化片使激發光與探測光偏振態互相垂直減少耦合，並搭配光阻斷器和鎖相放大器提高系統精準度。

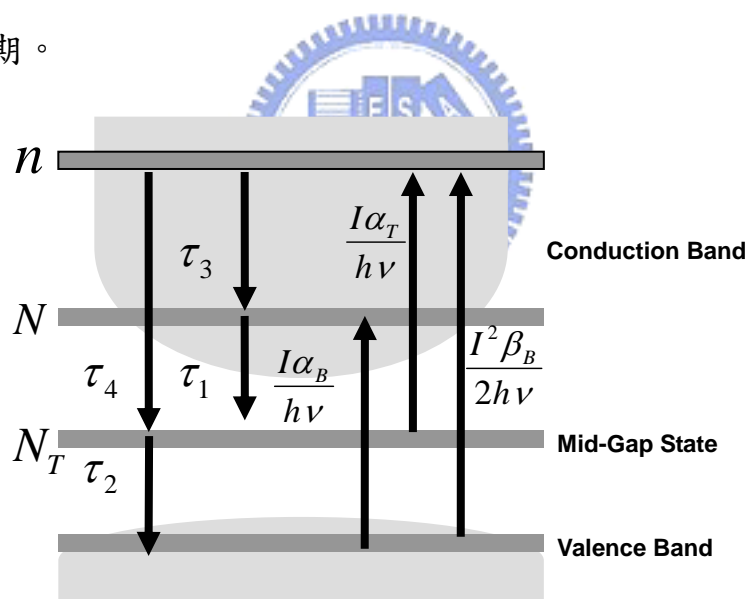
3.3 低溫砷化鎵材料特性

1952 年 Walker 發現砷化鎵半導體材料，砷化鎵具有高飽和速度、高載子飄移率和高崩潰電壓特性，另外，砷化鎵半導體為直接能隙結構，電子在能隙間躍遷不需依靠聲子作用，具高發光效率特性，這些特性使砷化鎵材料在光電領域有廣泛應用。

1978 年 Mortani 在低溫條件下成長砷化鎵晶體 [49]，低溫砷化鎵為高品質單晶摻雜 1% 到 2% 過量砷，過量砷使低溫砷化鎵產生大

量點缺陷，包含間隙缺陷(interstitial defect)、空位缺陷(vacancy defect)和對位缺陷(antisite defects)三種，由 Shockley-Read Hall(SRH)模型可知載子生命期與缺陷密度成反比 [50]，大量點缺陷使低溫砷化鎵具有次皮秒生命期。另外，過量砷產生應力扭曲砷化鎵結構，使電流傳輸變為跳躍式傳導，降低砷化鎵電阻係數。

1990 年 Melloch 發現低溫砷化鎵經過退火過程後會形成砷沉澱使缺陷密度降低 [51]，砷沉澱造成蕭基能障補抓自由載子且形成空乏層讓電阻增加，透過退火過程可提高低溫砷化鎵電阻係數並維持次皮秒生命期。



圖二十五 低溫伸化鎵能隙圖

1996 年 Benjamin、Loka 和 Smith 提出一組速率方程式，此組方程在時間、能量和激發波長皆精準預測低溫砷化鎵載子機制 [52-55]。低溫砷化鎵能隙圖如圖二十五，能量大於能隙光脈衝將基態載子激發至導帶底部，激發載子鬆弛主要來源並非由電子電洞復合，

而是被中間能帶補抓，在缺陷內之載子可鬆弛至價帶或經由光脈衝再次激發至導帶高處，同時光脈衝也可透過雙光子吸收效應直接將電子由價帶激發至導帶高處，導帶高處之自由載子可鬆弛至導帶底部或直接由缺陷所捕捉。低溫砷化鎵之動態機制速率方程式可表示為：

$$\frac{dN}{dt} = \frac{I\sigma_{BB}}{h\nu} \left(1 - \frac{N}{N_0}\right) - \frac{N}{\tau_1} \left(1 - \frac{N_T}{N_{T0}}\right) + \frac{n}{\tau_3} \quad (31)$$

$$\frac{dN_T}{dt} = -\frac{I\sigma_{TB}N_T}{h\nu} - \frac{N_T}{\tau_2} + \frac{N}{\tau_1} \left(1 - \frac{N_T}{N_{T0}}\right) + \frac{n}{\tau_4} \left(1 - \frac{N_T}{N_{T0}}\right) \quad (32)$$

$$\frac{dn}{dt} = \frac{I\sigma_{TB}N_T}{h\nu} + \frac{I^2\beta_{BB}}{h\nu} - \frac{n}{\tau_3} \left(1 - \frac{N}{N_0}\right) - \frac{n}{\tau_4} \left(1 - \frac{N_T}{N_{T0}}\right) \quad (33)$$

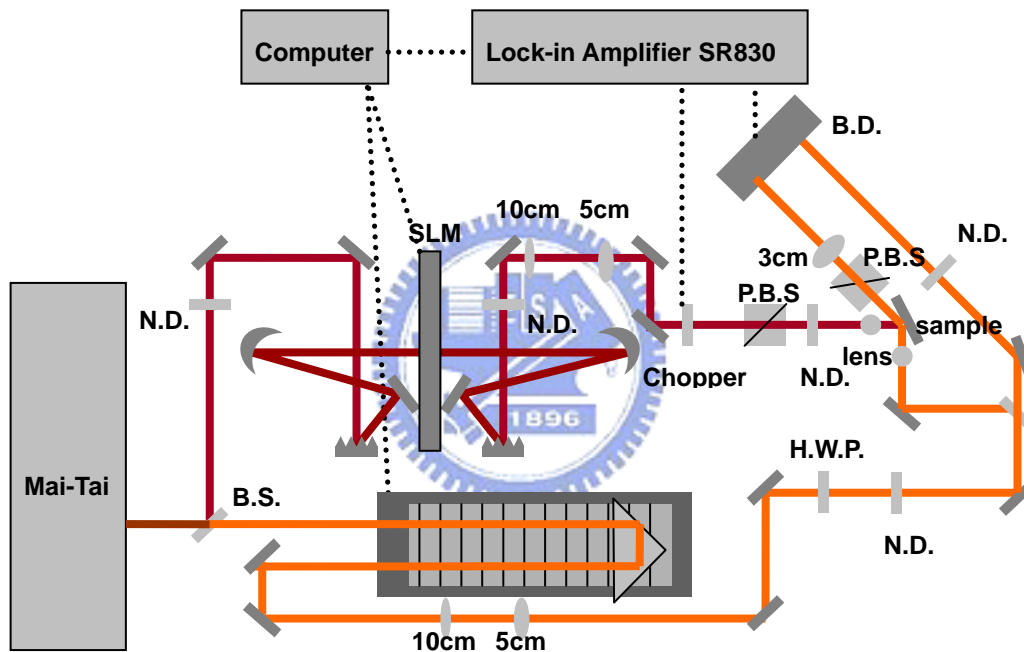
其中 N 、 N_T 、 n 分別代表導帶底部、缺陷內和導帶高處載子密度； σ_{BB} 、 σ_{TB} 、 β_{BB} 分別代表帶間單光子吸收截面積、缺陷至導帶單光子吸收截面積和帶間雙光子吸收係數； N_0 和 N_{T0} 分別代表導帶底部和缺陷之飽和密度； τ_1 、 τ_2 、 τ_3 、 τ_4 分別代表導帶底部至缺陷、缺陷至價帶、導帶高處至底部和導帶高處至缺陷的鬆弛時間。假設導帶底部和導帶高處之自由載子皆對折射率變化產生貢獻，則泵探技術所量測到之信號可表示成：

$$\frac{dR(t)}{R_0} \propto N(t) + n(t) \quad (34)$$

透過泵探技術量測信號搭配曲線擬合技術可解出上述參數。

第四章 實驗結果與分析

本章介紹實驗所看到的現象與原理分析，結構如下：4.1-啉頻控制泵探技術量測、4.2-啉頻控制兆赫時析光譜技術、4.2.1-天線輻射強度、寬度與啉頻相依性、4.2.2-雙光子吸收效應、4.2.3-光導天線取樣機制。

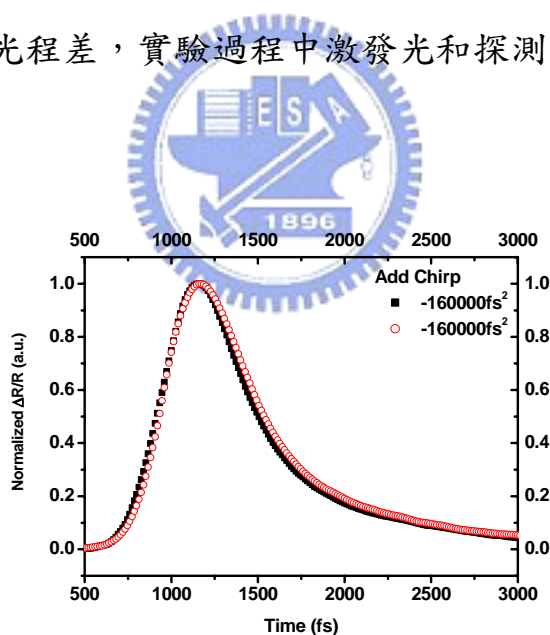


圖二十六 啉頻控制泵探技術量測實驗架構

4.1 啉頻控制泵探技術量測

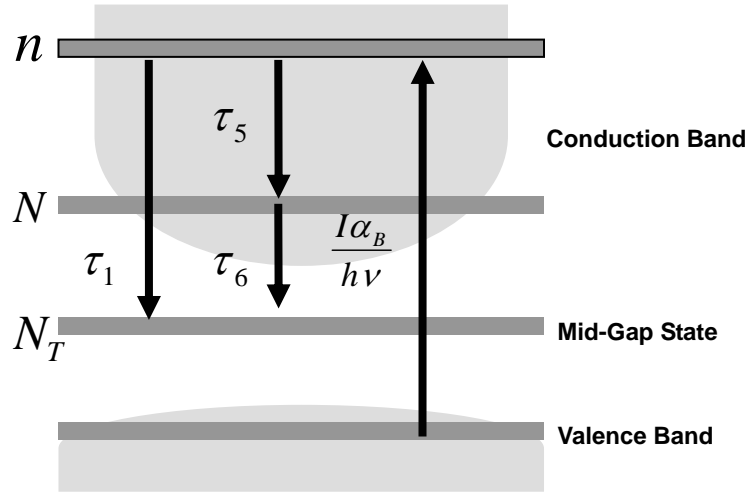
傳統泵探技術量測使用固定脈衝寬度激發材料，無法觀察到脈衝相位與半導體載子動力學交互作用，本實驗結合啉頻控制技術與泵探技術作量測，研究脈衝相位與載子動力學交互作用行為。實驗架構如圖二十六，使用鈦藍寶石雷射，中心波長 800nm 、半高寬 10nm 、

脈衝重複率 80MHz ，分光鏡將脈衝分為激發光與探測光，激發光入射一脈衝整形器。脈衝整形器由一對 830nm 的光柵、一對焦距 37.5cm 的拋物面鏡和液晶空間光調製器(CRI,128 elements)所構成。接著激發光經由透鏡聚焦至樣品上，入射角度 $\theta = 25^\circ$ ，雷射平均功率 40mW 到 120mW 。實驗中使用兩種不同焦距透鏡作聚焦，低激發密度下使用 5cm 透鏡聚焦，雷射直徑約 $100\mu\text{m}$ ，對應激發密度 $0.05 \sim 0.16(\text{J}/\text{m}^2)$ 。高激發密度下使用 1cm 透鏡聚焦，雷射直徑約 $20\mu\text{m}$ ，對應激發密度 $1.3 \sim 3.9(\text{J}/\text{m}^2)$ 。探測光經過步進馬達上之準直反射鏡形成可調光程差，實驗過程中激發光和探測光能量保持在 40 比 1 以上。



圖二十七 泵探實驗圖，激發密度 $0.05\text{J}/\text{m}^2$ 、啾啾量 $\pm 160000\text{fs}^2$

圖二十七為激發密度 $0.05\text{J}/\text{m}^2$ 下，脈衝啾啾量控制在 $\pm 160000\text{fs}^2$ 時的泵探信號比較，兩數據上升曲線相似，對應脈寬相等，但正啾啾泵探信號下降比負啾啾慢，鬆弛時間較負啾啾長。



圖二十八 低激發密度之低溫伸化鎳能隙圖

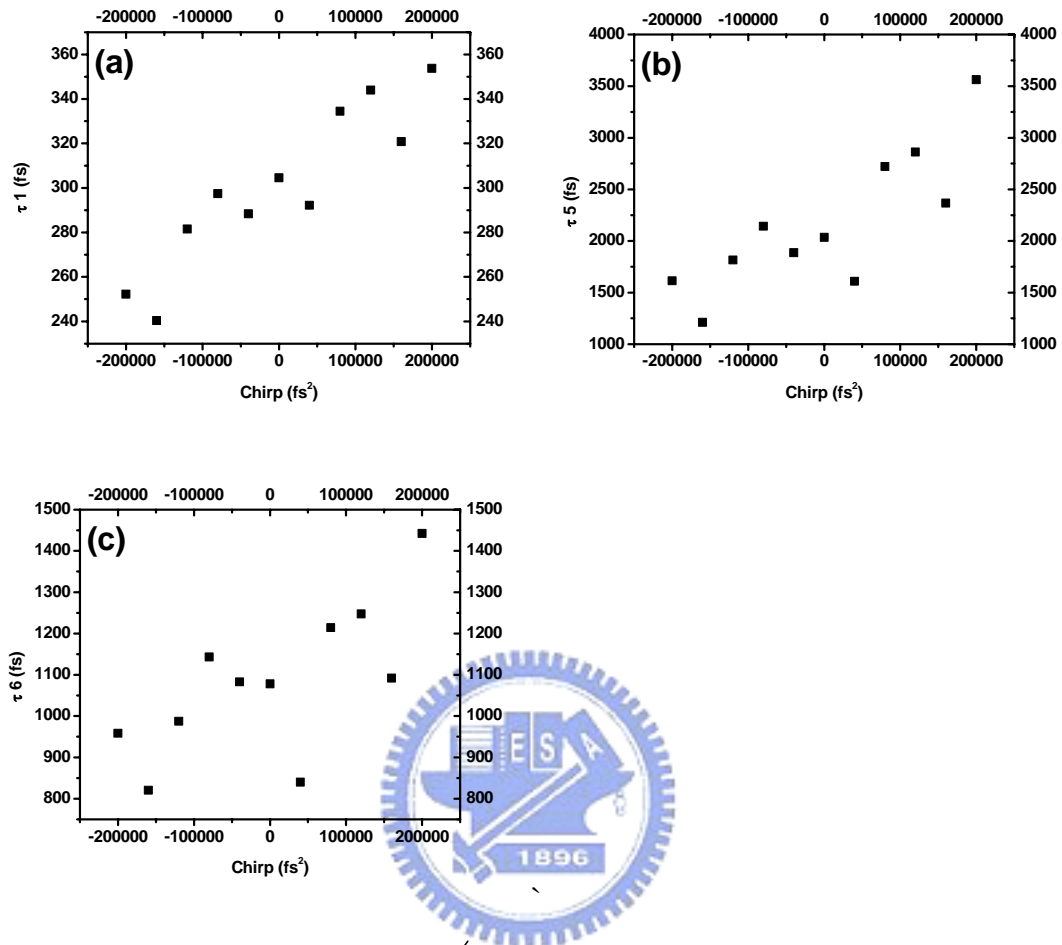
由曲線擬合分析知圖二十七之泵探實驗信號包含不只一個鬆弛時間，單純雙能階系統無法解釋此現象，為分析低溫伸化鎳載子鬆弛機制與啾頻量關係，修改 Benjamin、Loka 和 Smith 提出之模型 [52-55]，圖二十八為修改後低激發密度低溫伸化鎳能隙圖，假設能量大於能隙之光脈衝將基態載子激發至導帶，激發載子可透過缺陷捕捉至中間能帶，或先經熱載子鬆弛到導帶底部再鬆弛至中間能帶，則低溫伸化鎳在低激發密度下之動態機制速率方程式可表示為：

$$\frac{dn}{dt} = \frac{I\sigma_{BB}}{h\nu} - \frac{n}{\tau_1} - \frac{n}{\tau_5} \quad (35)$$

$$\frac{dN}{dt} = \frac{n}{\tau_5} - \frac{N}{\tau_6} \quad (36)$$

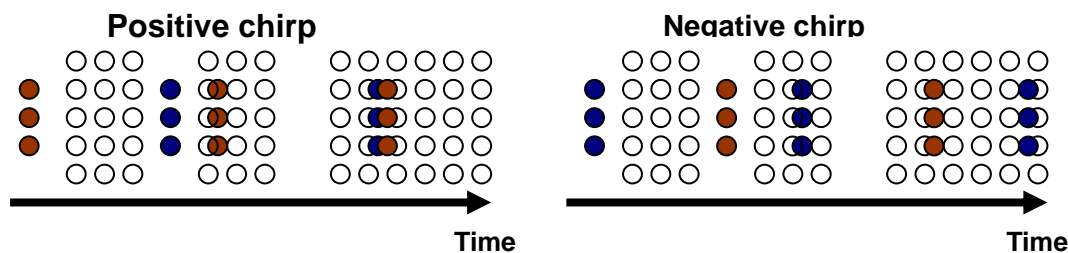
其中 n 、 N 分別代表導帶高處和導帶底部載子密度； α_{BB} 代表帶間單光子吸收係數； τ_1 、 τ_5 、 τ_6 、分別代表導帶高處至缺陷、導帶高處至導帶底部、導帶底部至缺陷的鬆弛時間，假設導帶底部和導帶

高處之自由載子 n 和 N 皆對折射率變化產生貢獻。



圖二十九 激發密度 $0.05 J/m^2$ 下，熱載子鬆弛時間，(a) 導帶高處至缺陷捕捉時間 τ_1 (b) 導帶高處至導帶底部鬆弛時間 τ_5 (c) 導帶底部至缺陷的鬆弛時間 τ_6

圖二十九(a)、(b)、(c)分別對應導帶高處至缺陷捕捉時間 τ_1 、導帶高處至導帶底部鬆弛時間 τ_5 、導帶底部至缺陷的鬆弛時間 τ_6 ，脈衝啾頻量由 $-200000 fs^2$ 調變至 $+200000 fs^2$ 過程，載子捕捉時間 τ_1 由 $250 fs$ 慢慢上升至 $350 fs$ ，熱載子鬆弛時間 τ_5 由 $1700 fs$ 慢慢上升至 $3600 fs$ 。

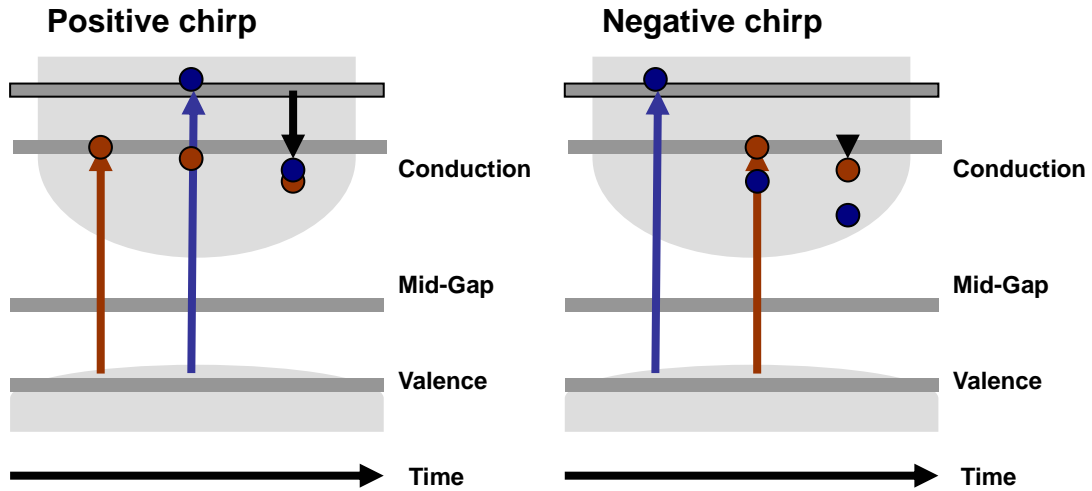


圖三十 載子補捉時間 τ_1 與啣頻相依性機制圖

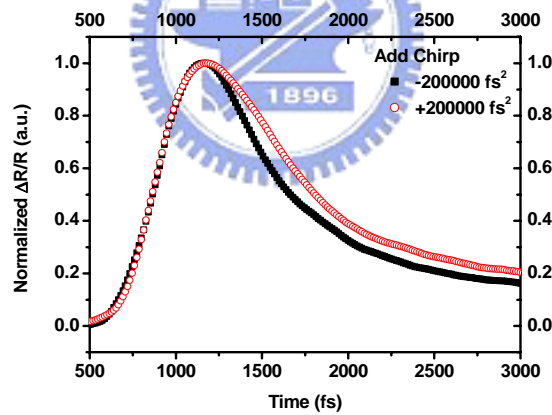
Horng 調變雷射中心頻率觀察低溫砷化鎵樣品鬆弛時間變化，發現激發頻率上升時，鬆弛時間隨之下降 [56-57]。此現象歸咎於高能載子具有較高溢出能量，有較高機會激發聲子產生散射，因此具有較短鬆弛時間。針對脈衝啣啣量由負啣頻向正啣頻增加，載子捕捉時間 τ_1 上升的現象，我們提出一種說法，正啣啣代表低頻光走在高頻光前緣，而負啣啣代表高頻光走在低頻光前緣。機制如圖三十，當正啣啣脈衝入射樣品，時間上低能量載子先產生接著產生高能量載子，高能量載子擁有較多溢出能量、具有較高載子移動率，雖然高能量載較慢產生，但較高的載子移動率使高能量載子在某段時間會和低能量載子在空間上重疊，此時載子捕捉過程類似於增加激發密度，因此鬆弛時間將會上升。

而熱載子鬆弛時間 τ_5 上升的歸咎於高能載子具有較高溢出能量，有較高機會激發聲子產生散射，因此具有較短鬆弛時間。機制如圖三十一，當正啣啣脈衝入射樣品，後激發之高能量載子雖然具有較短鬆弛時間，但具有較長鬆弛時間的低能量載子先被激發，因此高能

量載子在鬆弛過程中被低能量載子所阻擋整體載子鬆弛時間將會拉長。



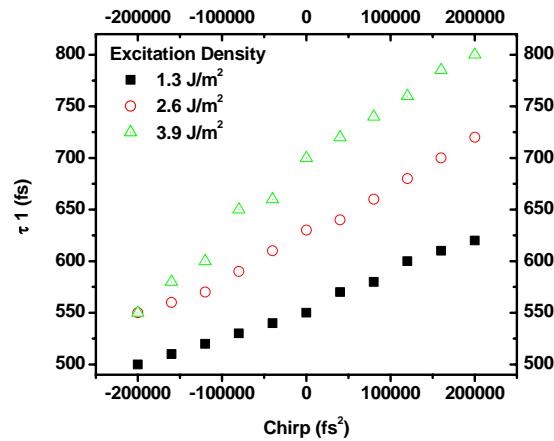
圖三十一 熱載子鬆弛時間 τ_5 與啣頻相依性機制圖



圖三十二 泵探實驗圖，激發密度 $1.3 J/m^2$ 、啣啣量 $\pm 200000 fs^2$

當激發密度增加，由於瓶頸效應，熱載子鬆弛時間 τ_5 漸增 [58]，對低溫紳化鎘激發之動態行為影響力減弱，泵探信號將趨近於單一指數遞減，因此在激發密度 $1.3 \sim 3.9 (J/m^2)$ 下，參數擬合只考慮載子捕捉時間 τ_1 作用。圖三十二為激發密度 $3.9 (J/m^2)$ 下，脈衝啣啣量控制

在 $\pm 200000 \text{ fs}^2$ 時的泵探信號比較，和圖二十七類似，兩數據上升曲線相似，對應脈寬相等，但正啁啾泵探信號下降比負啁啾慢，鬆弛時間較負啁啾長。

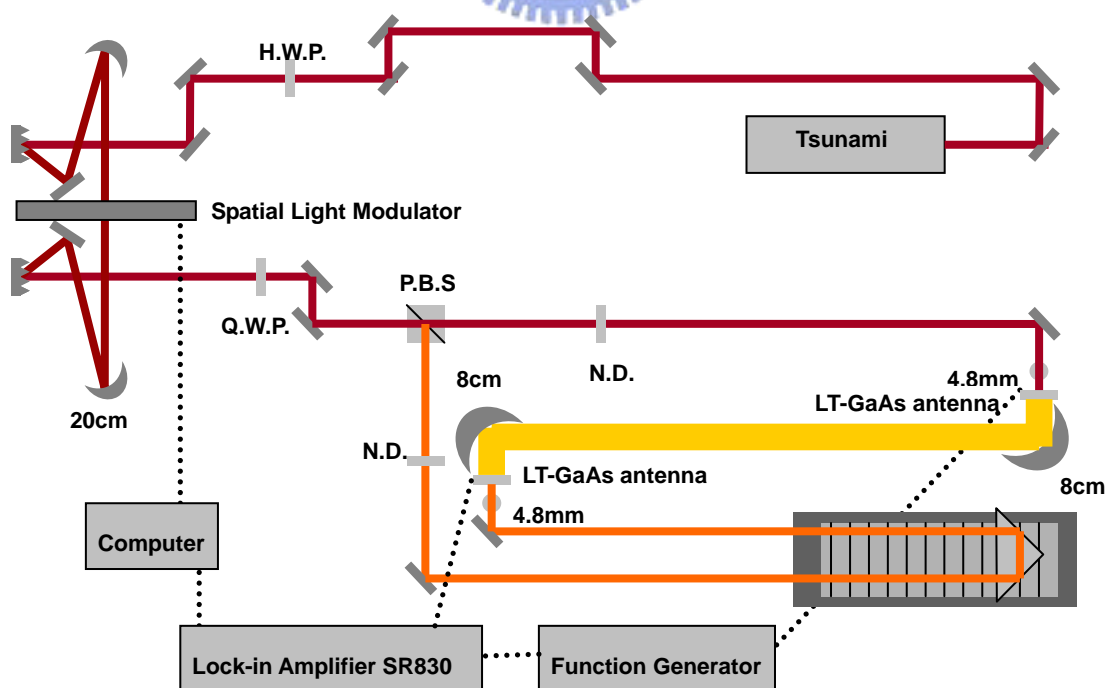


圖三十三 激發密度 $1.3 \sim 3.9 (J/m^2)$ 下，載子由導帶高處至缺陷捕捉時間 τ_1

圖三十三為脈衝啁頻量由 -200000 fs^2 調變至 $+200000 \text{ fs}^2$ 、激發密度控制 $1.3 \sim 3.9 (J/m^2)$ 下，載子捕捉時間 τ_1 變化，和圖二十九(a)類似，正啁啾脈衝激發具有較長鬆弛時間。而激發密度上升，低溫砷化鎵樣品缺陷數固定，載子捕捉能力有限，載子捕捉時間 τ_1 上升(捕捉飽和現象)。另外，激發密度上升時，鬆弛時間與啁啾相關性也增加，此現象歸因於激發載子數目增加，載子間彼此耦合機會增加，因此正啁啾時載子間重疊現象較明顯。

4.2 啾頻控制兆赫時析光譜技術

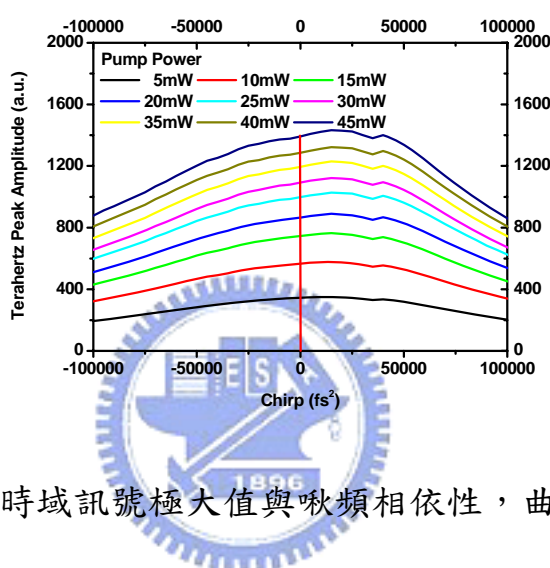
為研究脈衝相位與半導體載子動力學交互作用對半導體天線輻射兆赫波機制之影響，結合啾頻控制技術與兆赫時機光譜技術作量測。實驗架構如圖三十四，使用鈦藍寶石雷射，中心波長 800nm 、半高寬 40nm 、脈衝重複率 82MHz ，雷射脈衝先入射一脈衝整形器。脈衝整形器由一對 $600/\text{mm}$ 的光柵、一對焦距 20cm 的拋物面鏡和液晶空間光調製器(CRI, 128 elements)所構成。出射之脈衝經由分光鏡分光，一道脈衝激發光導天線輻射兆赫波，兆赫波先經過一對拋物面鏡增加收集效率再經由矽透鏡聚焦至偵測天線上，另一道延遲脈衝激發偵測端光導天線紀錄光電流資訊，透過光電流資訊可得兆赫波資訊，此架構稱兆赫輻射時析光譜系統(THz-TDS)。



圖三十四 啾頻控制泵探技術量測實驗架構

4.2.1 天線輻射強度、寬度與啾頻相依性

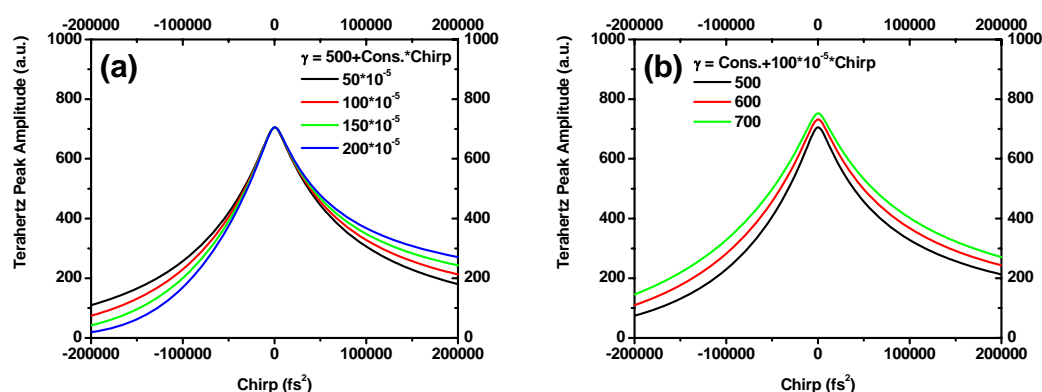
圖三十五為利用啾頻控制兆赫時析光譜技術量測時域訊號極大值與啾頻相依性關係，當激發密度小時，正負啾頻量得訊號無明顯差異，當激發密度增加，正啾頻脈衝激發比負啾頻激發有較高時域訊號極大值，圖形由對稱轉向歪斜，適量正啾頻可量得最大訊號極大值，



圖三十五 兆赫波時域訊號極大值與啾頻相依性，曲線由下到上為激發能量由 $5mW$ 到 $45mW$

由圖三十三啾頻控制泵探技術量測實驗知，載子捕捉時間和熱鬆弛時間隨脈衝啾頻量增加而上升，為驗證天線輻射強度與啾頻相依性來源，將啾頻量由負啾頻增加至正啾頻時載子捕捉時間增加特性放入模擬，圖三十六(a)為模擬兆赫時析光譜系統量測時域訊號極大值和啾頻相依性關係，當鬆弛時間與啾頻相依性增加，圖形由對稱轉向歪斜，正啾頻脈衝激發比負啾頻激發有較高訊號極大值。圖三十六(b)為模擬兆赫時析光譜系統量測極大值和鬆弛時間關係，可由圖看到，

當鬆弛時間增加的確具有較高訊號極大值。

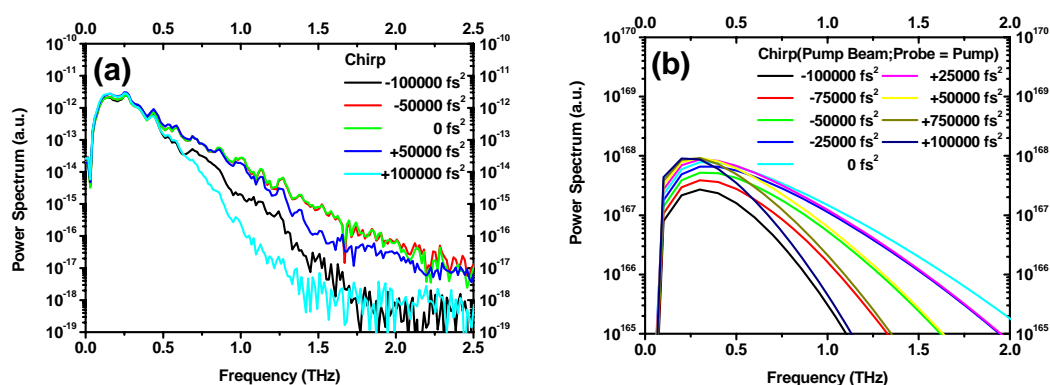


圖三十六 模擬兆赫時析光譜系統量測時域訊號極大值和啾頻相依性關係(a)啾頻相依性(b)鬆弛時間相依性

結合啾頻控制系探實驗和圖三十六模擬結果可知激發密度小時，鬆弛時間與啾頻不具相依性，正負啾頻量得訊號無明顯差異，當激發密度增加正啾啾激發具有較長鬆弛時間因此具有較高訊號極大值，隨著激發密度增加，鬆弛時間與啾頻相依性隨之增加，圖形歪斜現象漸趨明顯。鬆弛時間增加具有較高訊號極大值也可由第二章圖三和圖十四解釋，時域最大訊號值對應至頻譜積分，當鬆弛時間增加，高頻部分不變而低頻部分增加，頻譜積分值增加導致時域訊號值增幅。

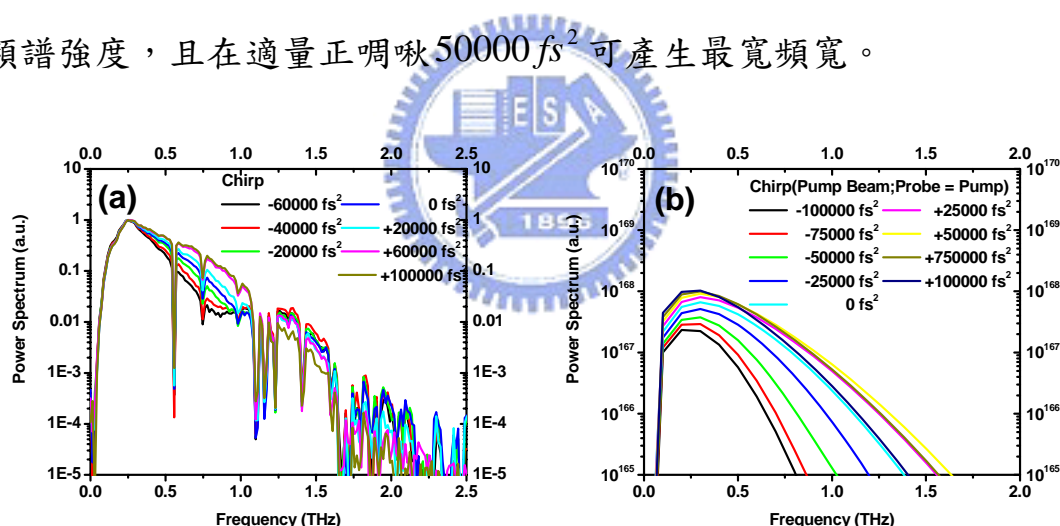
圖三十七(a)為利用啾頻控制兆赫時析光譜技術量測兆赫波頻譜與啾頻相依性關係，在低頻部分使用正啾啾激發具有較高頻譜強度，高頻部分使用最短脈衝和啾啾量 -50000 fs^2 具有最寬頻譜，再來分別

為啾頻量 $+50000 \text{ fs}^2$ 、 -100000 fs^2 和 $+100000 \text{ fs}^2$ ，負啾啾激發比起正啾頻激發具有較寬頻譜。圖三十七(b)為模擬兆赫時析光譜系統量測頻譜和啾頻相依性關係，低頻部分使用正啾啾激發具有較高頻譜強度，高頻部分使用最短脈衝有最寬頻譜，而使用正或負啾啾脈衝激發對高頻應無明顯影響，實驗中負啾啾激發具有較寬頻譜可能來自天線取樣效應，以第二章圖三和圖十四解釋，在天線輻射端，鬆弛時間不影響高頻分量，而在輻射偵測端，鬆弛時間減少使頻譜寬度上升，由頻率響應知鬆弛時間小具較佳高頻響應，因此負啾啾激發比起正啾頻激發具有較寬頻譜。而實驗中啾啾量 -50000 fs^2 和最短脈衝具有差不多頻寬原因為雖然 -50000 fs^2 脈衝寬度比最短脈衝來的長，但 -50000 fs^2 脈衝載子捕捉時間比最短脈衝來的短，綜合此兩特性使得兩者具有差不多頻寬。



圖三十七 兆赫時析光譜系統量測頻譜和啾頻相依性關係(a)實驗結果(b)模擬結果

Chung 利用同調控制技術調變兆赫輻射時析光譜系統發現頻譜寬度與脈衝啾啾量具相依性，正啾啾激發比負啾啾可產生較強輸出與較寬頻寬，且適量正啾啾可產生最強輸出與最寬頻寬，圖三十八(a)為其實驗結果，同樣在低頻部分使用正啾啾激發具有較高頻譜強度，但使用正啾啾激發比起負啾啾可產生較寬頻寬，且適量正啾啾可產生最寬頻寬，此現象和圖三十七不同。其原因應為 Chung 的實驗中激發光與探測光啾啾量不等，圖三十八(b)為假設激發光啾啾量比探測光大 100000 fs^2 時的模擬，同樣在低頻部分使用正啾啾激發具有較高頻譜強度，且在適量正啾啾 50000 fs^2 可產生最寬頻寬。

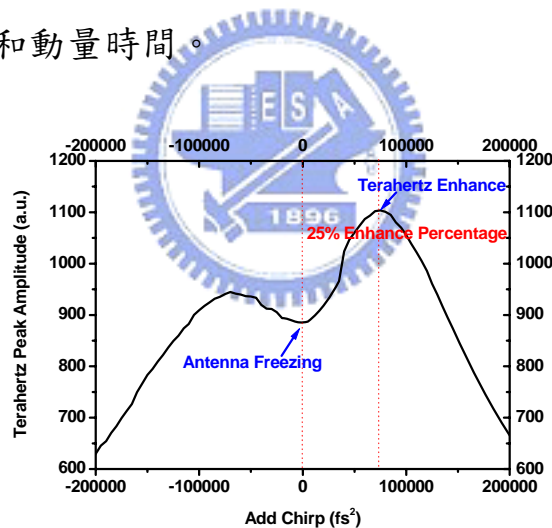


圖三十八 (a) Chung 作出之兆赫時析光譜系統量測頻譜和啾啾量相依性關係 [38] (b) 激發光啾啾量比探測光大 100000 fs^2 時的模擬結果

由第二章 Drude-Lorentz 模型模擬知，為產生高能量、高頻寬兆赫光源建議使用短脈衝激發天線並選用長載子鬆弛時間和長動量鬆弛時間材料製作天線，在輻射偵測端為精準取樣兆赫波形與頻譜，建

議使用短脈衝取樣搭配短載子鬆弛時間與短動量鬆弛時間天線，這也是我猜測 Shen 在兆赫輻射時析光譜系統能觀察到 $20THz$ 頻寬主要原因，他在天線輻射端選擇鬆弛時間 $10ps$ 天線、偵測短選擇 $100fs$ 天線，然後用 $15fs$ 脈衝當激發光源 [59]。

雖然透過啾頻控制，當啾頻量由負啾頻向正啾頻移動，載子鬆弛時間隨之變大，些微正啾頻可使兆赫輻射時析光譜系統量測時域訊號值最大值增加，但由第二章模擬知此方法將犧牲兆赫波頻寬，實驗上不建議透過啾頻控制增幅時域訊號最大值，仍應利用材料成長條件調控載子鬆弛時間和動量時間。

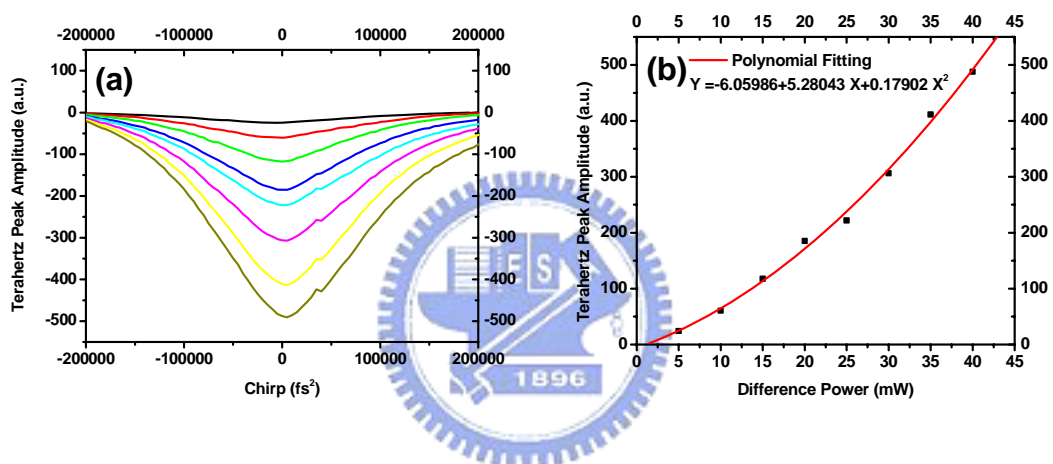


圖三十九 雙光子吸收貢獻之兆赫波時域訊號極大值與啾頻相依性

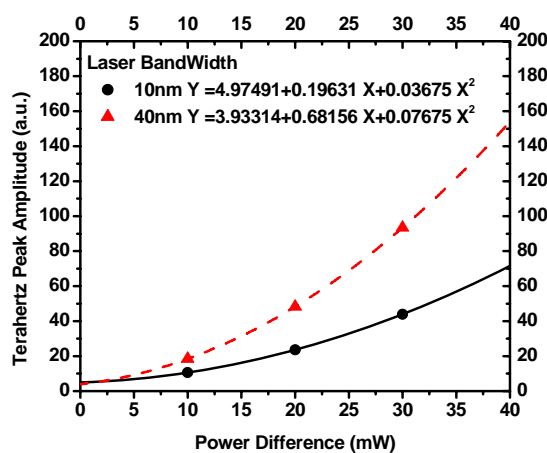
4.2.2 雙光子吸收效應

圖三十九同樣為啾頻控制兆赫時析光譜技術量測時域訊號極大值與啾頻相依性，和圖三十五比較，除了正啾頻脈衝激發比負啾頻激發有較高訊號極大值特性外，可發現訊號極大值位置大幅往正啾頻移

動且在最短脈衝附近有個波谷產生，這表示有其他因素摻雜，為瞭解此現象，圖四十(a)為利用圖三十五能量5mW 曲線當背景，將各能量曲線減去背景結果，各曲線恆小於零代表有因素降低兆赫輻射強度，且隨脈衝變短此現象變嚴重，圖三十五(b)為最短脈衝處，訊號極大值與能量差關係，可由圖看到此因素具有非線性特性，隨著能量上升變大。

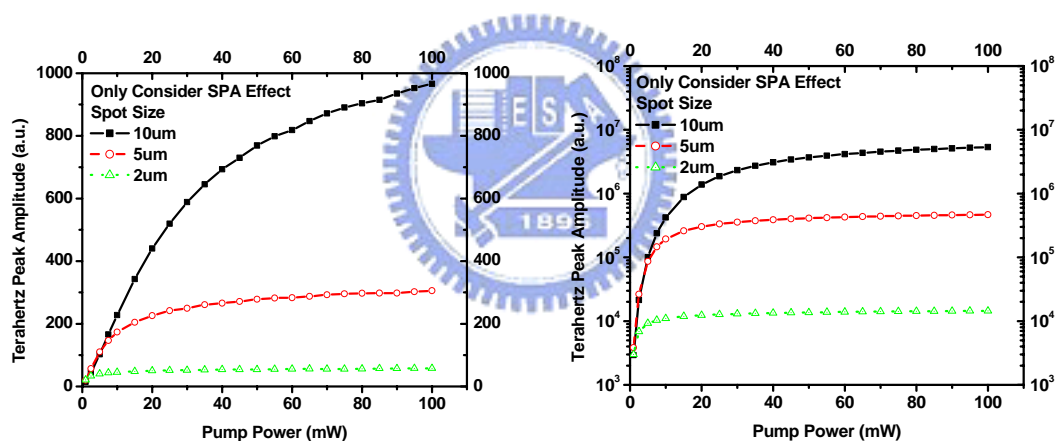


圖四十 (a)雙光子吸收效應減少時域訊號值與啾頻相依性(b)最短脈衝處，雙光子吸收導致時域訊號值下降量與能量關係



圖四十一 雙光子吸收導致時域訊號值下降量與能量差關係

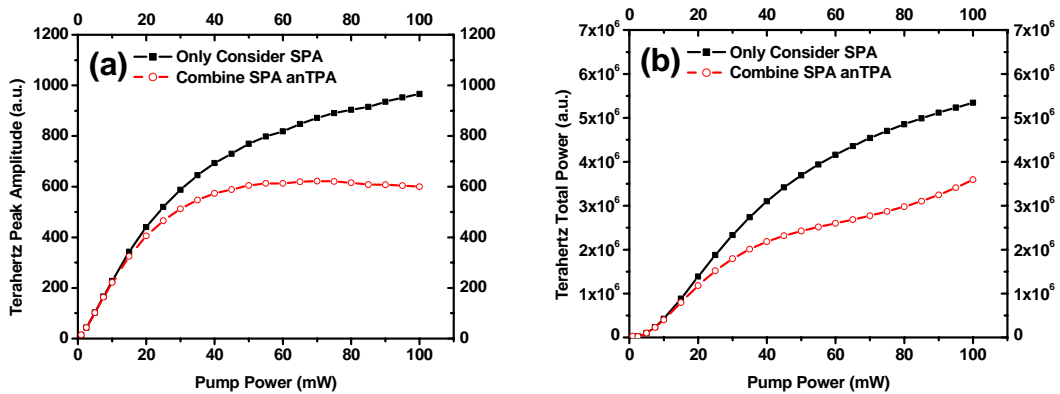
圖四十一為使用 $10nm$ 和 $40nm$ 頻寬雷射下，用 $20mW$ 、 $30mW$ 、 $40mW$ 訊號減去 $10mW$ 背景訊號得到時域訊號減小值與能量關係， $40nm$ 的訊號減小值比 $10nm$ 大且非線性特性較明顯，加上脈衝寬度短此非線性較明顯特性(圖四十(a))，可猜測來源應是材料的雙光子吸收效應，1996 年到 1998 年 Benjamin、Smith 和 Loka 量測一系列低溫砷化鎵雙光子吸收特性，實驗得到低溫砷化鎵雙光子吸收係數約 $35cm/GW$ 、單光子吸收載子捕捉時間約 $1.5ps$ 、雙光子吸收載子捕捉時間約 $300fs$ [52-55]。



圖四十二 (a)模擬純單光子吸收效應下時域訊號極大值和(b)總能量，雷射直徑分別為 $2\mu m$ 、 $5\mu m$ 、 $10\mu m$

接著探討單光子吸收與雙光子吸收效應對於光導天線輻射兆赫波機制之影響，圖四十二(a)、(b)分別為模擬只考慮單光子吸收效應時的時域訊號極大值和總能量，和圖九結果相似，當激發能量提高，會有激發飽和以及電場作用深度限制兩個問題使整體兆赫輻射能量

趨向飽和。而激發面積增加，激發飽和和電場作用問題減少，天線輻射能量增加，這是為什麼產生高能量天線輻射輸出通常使用大孔鏡光導天線原因。

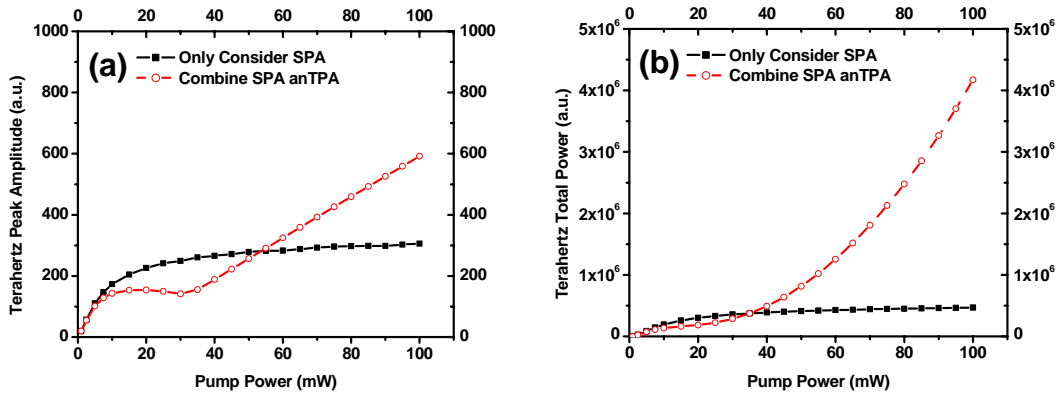


圖四十三 模擬激發直徑10um下，時域訊號極大值和總能量比較，
(a)純單光子吸收效應(b)綜合雙光子吸收效應及中間能帶再次激發

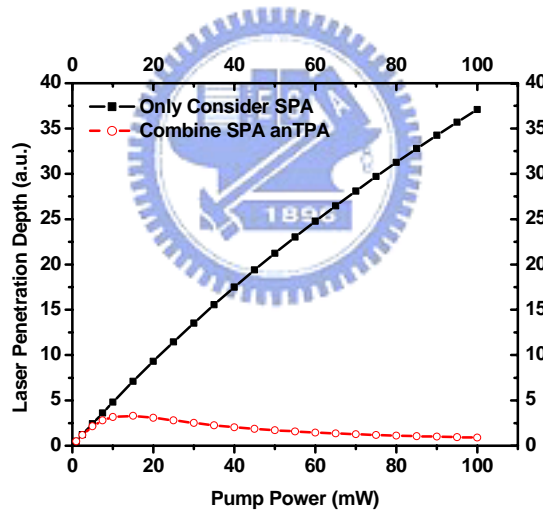
圖四十三(a)、(b)為模擬激發直徑10um下，只有單光子吸收效應和綜合雙光子吸收效應及中間能帶再次激發的時域訊號極大值和總能量比較，可看到加上雙光子吸收效應和中間能帶再次激發效應後，整體時域訊號值和總能量皆下降，原因是雙光子吸收效應的載子轉換效率只有單光子的一半。

圖四十四(a)、(b)為模擬激發直徑5um下，只有單光子吸收效應和綜合雙光子吸收效應及中間能帶再次激發的時域訊號極大值和總能量比較。激發能量一開始增加，整體時域訊號值和總能量皆下降，但在激發能量超過30mW後，整體時域訊號值和總能量漸漸增加，最

後超過只考慮單光子吸收效應時的訊號極大值和總能量。



圖四十四 模擬激發直徑 5μm 下，時域訊號極大值和總能量比較，(a) 純單光子吸收效應 (b) 綜合雙光子吸收效應及中間能帶再次激發

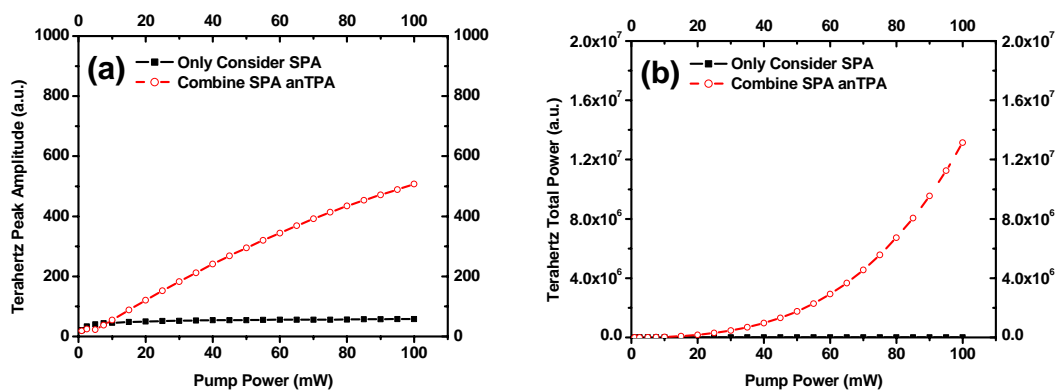


圖四十五 激發光侵入深度，(a) 純單光子吸收效應 (b) 綜合雙光子吸收效應及中間能帶再次激發

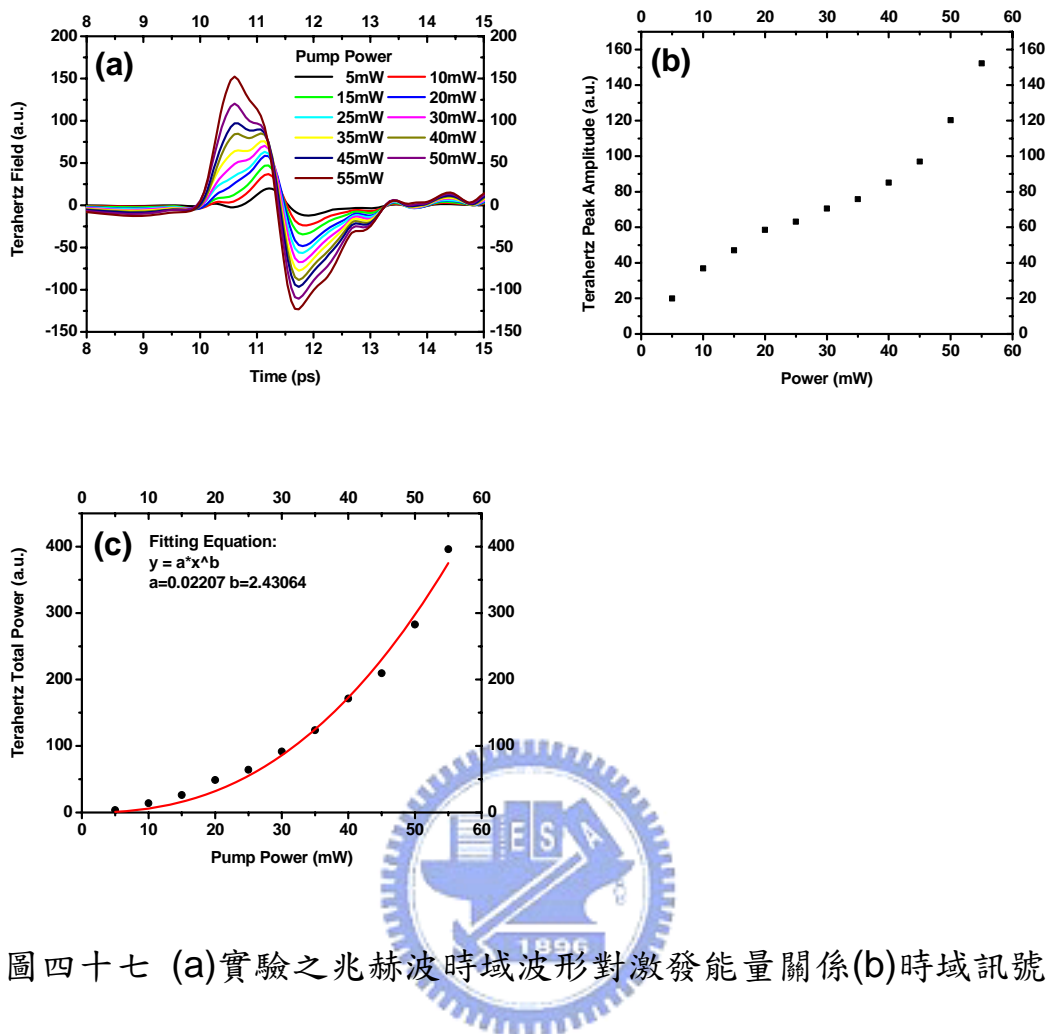
圖四十五為激發光侵入深度比較，對只有單光子吸收效應的例子而言，侵入深度隨著激發光能量上升而增加，但電場作用深度無法改變，只得多餘載子不再經由偏壓加速貢獻，輻射能量漸趨飽和。加入

雙光子吸收效應後，可透過雙光子吸收能階降低激發飽和問題，侵入深度將下降使全部載子皆可經由偏壓加速貢獻，最終使整體時域訊號值和總能量超過只有單光子吸收效應作用的例子。

圖四十六(a)、(b)為模擬激發直徑 $2\mu m$ 下，只有單光子吸收效應和綜合雙光子吸收效應及中間能帶再次激發的時域訊號極大值和總能量比較。只考慮單光子吸收效應時，訊號極大值和總能量在激發能量 $5mW$ 時就已飽和。加入雙光子吸收效應後，訊號極大值和總能量隨著激發能量上升而增加，當激發能量大於 $80mW$ 後，訊號極大值有點飽和效應，而總能量仍然持續上升，這是因為圖六的屏避效應已經產生，激發載子被區域電場來回驅動震盪，產生高頻兆赫輻射，總能量明顯增加。



圖四十六 模擬激發直徑 $2\mu m$ 下，時域訊號極大值和總能量比較，(a) 純單光子吸收效應(b)綜合雙光子吸收效應及中間能帶再次激發



圖四十七 (a)實驗之兆赫波時域波形對激發能量關係(b)時域訊號極大值和對激發能量關係(c)總能量對激發能量關係

圖四十七(a)、(b)為實驗之兆赫波時域強度、時域訊號極大值和總能量對激發能量關係，隨著激發能量上升，時域訊號極大值先緩慢上升，在激發能量30mW附近有些微停頓再持續上升，而總能量則隨著激發能量上升而非線性增加，實驗的結果圖四十四相吻合。實驗中看到雙光子吸收效應貢獻至天線兆赫輻射的現象，透過雙光子吸收效應，剛開始由於雙光子用兩光子換一自由載子將使輻射能量減少，但當單光子吸收飽和時，價電子仍可透過雙光子吸收躍遷至導帶，天線

輻射能量將可持續增加。

過去 Yang 比較波長 800nm 和 400nm 脈衝激發半絕緣砷化鎵天線的波形和頻譜 [60]，結果使用波長 800nm 的脈衝具有較寬的頻譜，他認為其原因在於波長 400nm 的脈衝將載子激發至能帶高處降低載子移動率使頻譜寬度下降。此處我認為主要原因是 Yang 在利用波長 800nm 脈衝倍頻產生 400nm 的脈衝後沒作色散補償，結果使得波長 400nm 的脈衝時域寬度反而較寬，兆赫輻射頻譜寬度下降。不論載子移動率是否下降，透過雙光子吸收能階無激發飽和問題，將大幅增加天線輻射能量，且可透過區域電場震盪產生高頻輻射，一舉突破目前光導天線頻譜極大值位在 0 ~ 1THz 之限制。



4.2.3 光導天線取樣機制

第二章介紹過光導天線輻射與接收原理，偵測端量得之光電流

$I_d(\tau)$ 為偵測端波形 $v_d(t)$ 與時變導電率 $g(t)$ 的相關函數(correlation)：

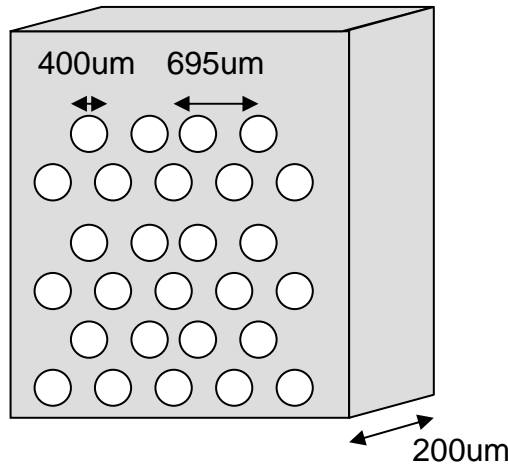
$$I_d(\tau) \propto \int v_d(t)g(t-\tau)dt \quad (37)$$

將偵測端波形 $v_d(t)$ 和時變導電率 $g(t)$ 以式(16)和(17)帶入可得：

$$I_d(\tau) = \iint H(\omega)E_{THz}(\omega)e^{j\omega t}d\omega \int I_g(t')(1-e^{-\frac{t-\tau-t'}{\tau_s}})e^{-\frac{t-\tau-t'}{\tau_c}}dt'dt \quad (38)$$

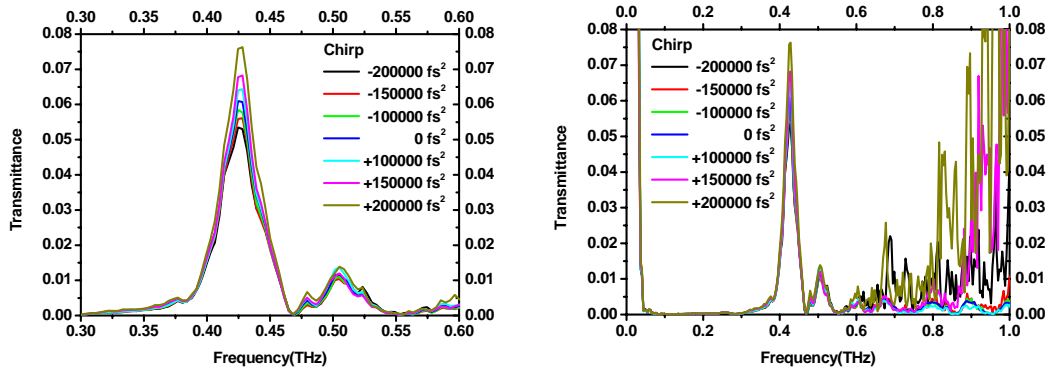
$E_{THz}(\omega)$ 代表天線輻射兆赫頻譜、 $H(\omega)$ 代表天線和系統頻率響

應、 $I_g(t')$ 代表探測光時域強度、 τ_C 和 τ_S 分別代表偵測天線載子鬆弛時間與動量鬆弛時間。由於相關函數特性，偵測端量測之光電流為扭曲過後的結果，可能無法真實顯現天線輻射端之波形。



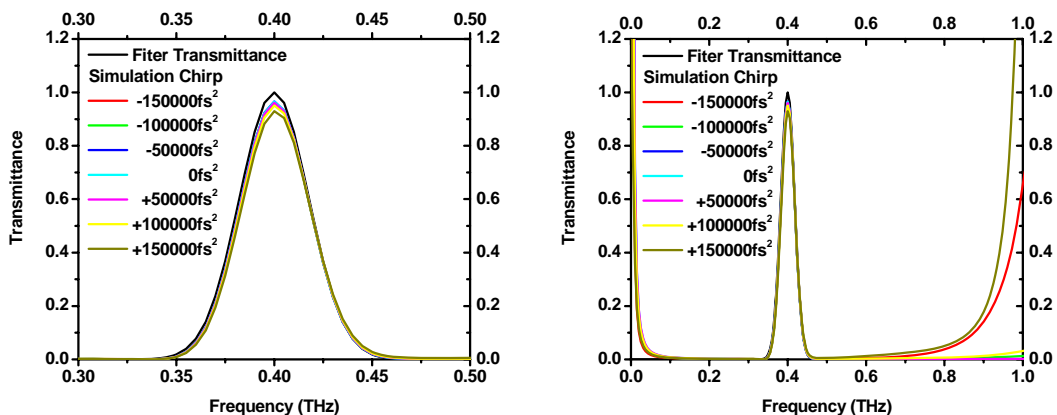
圖四十八 二維光子晶體兆赫波濾波器

為證明此結論，利用啾頻控制兆赫時析光譜技術量測樣品頻率響應，此處使用窄頻兆赫波濾波器，濾波器由二維金屬光子晶體所構成，結構如圖四十八，樣品厚度 $200\mu\text{m}$ 、晶格特性為六角晶格圓洞、晶格週期 $695\mu\text{m}$ 、圓洞直徑 $400\mu\text{m}$ ，圖四十九為改變脈衝啾頻量測之穿透率， 0.4THz 附近的響應波形差不多，但各啾頻之最大穿透率不同，而在 0.5THz 附近的穿透率卻差不多，因此改變脈衝啾頻量測之響應不僅僅只是縮放比例問題。在低頻 0.1THz 和高頻 $>1\text{THz}$ 部分的穿透率可明顯看到扭曲的現象，原因在於相關函數特性使得扭曲現象在高頻和低頻區極為嚴重。

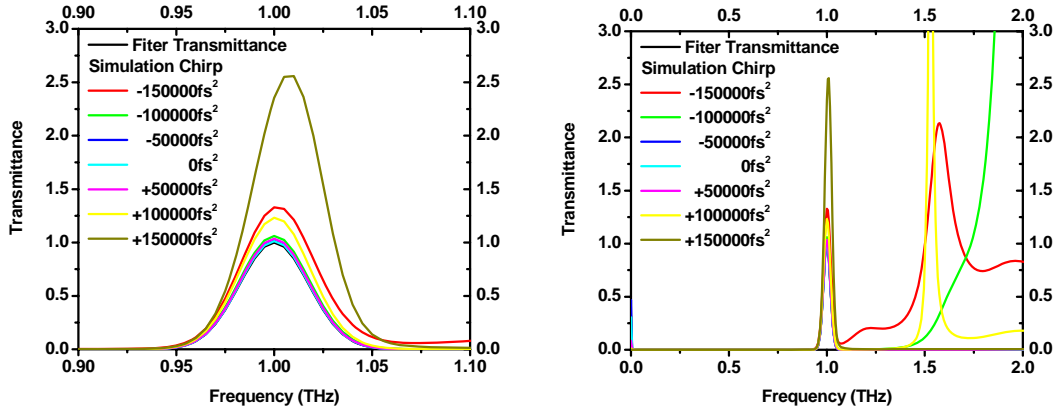


圖四十九 實驗量測兆赫波濾波器穿透率與啾頻相依性

圖五十為假設濾波器中心頻率在 0.4THz 時，模擬得到之濾波器穿透率，和實驗相同，在穿透帶附近的響應波形差不多，主要差別在最大穿透率有些為差異，但在低頻區和高頻區有明顯扭曲的現象，圖五十一為假設濾波器中心頻率在 1THz 時，模擬得到之濾波器穿透率，在穿透帶附近的響應波形已經明顯有穿透率大於一的異常現象，此模擬顯示相關函數在天線取樣的問題，由於無法真實顯現天線輻射端之波形，導致量測樣品響應結果需要校正。



圖五十 模擬濾波器中心頻率 0.4THz 時，穿透率與啾頻相依性



圖五十一 模擬濾波器中心頻率1THz時，穿透率與啾頻相依性

量測兆赫波段材料特性是把通過樣品的頻譜除以背景計算，理論

上可以表示成：

$$M(\omega) = I_S(\omega) / I_R(\omega) \quad (39)$$

$M(\omega)$ 代表材料頻譜響應、 $I_S(\omega)$ 代表兆赫波通過樣品後的頻

譜、 $I_R(\omega)$ 代表背景兆赫波頻譜，把偵測天線理論加入可得：

$$\frac{I_S(\omega)}{I_R(\omega)} = \frac{\iiint H(\omega) M(\omega) E_{THz}(\omega) e^{j\omega t} d\omega \int_{I_g(t')}^{t-\tau} (1 - e^{-\frac{t-\tau-t'}{\tau_s}}) e^{-\frac{t-\tau-t'}{\tau_c}} dt' dt e^{-j\omega\tau} d\omega}{\iiint H(\omega) E_{THz}(\omega) e^{j\omega t} d\omega \int_{I_g(t')}^{t-\tau} (1 - e^{-\frac{t-\tau-t'}{\tau_s}}) e^{-\frac{t-\tau-t'}{\tau_c}} dt' dt e^{-j\omega\tau} d\omega} \quad (40)$$

若要使上式等於材料頻譜響應 $M(\omega)$ ，則時變導電率 $g(t)$ 須等於 Delta 函數，此結果暗示偵測系統要求探測光脈寬短、載子鬆弛時間與動量鬆弛時間都很短，猜測 Shen 在兆赫輻射時析光譜系統能觀察到 20THz 頻寬主要原因是他在天線偵測短特別選擇 100fs 天線，然後用

15fs脈衝當激發光源 [59]。

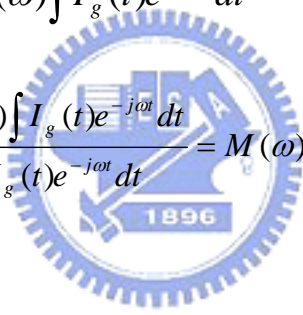
若改用電光偵測，由於電光偵測無載子鬆弛時間與動量鬆弛時間耦合問題，時間解析度可透過脈衝壓縮提高至最短脈寬，且量測樣品時，由於最短脈衝具左右對稱特性，相干函數可改變為捲積，捲積特性將使取樣函數在材料特性量測中相消，得到精確響應，如式

(41-43)。

$$I_d(\tau) = \int H(\omega)E_{THz}(\omega)e^{j\omega\tau} d\omega \otimes I_g(t) \quad (41)$$

$$I_d(\omega) = H(\omega)M(\omega)E_{THz}(\omega) \int I_g(t)e^{-j\omega t} dt \quad (42)$$

$$\frac{I_s(\omega)}{I_R(\omega)} = \frac{H(\omega)M(\omega)E_{THz}(\omega) \int I_g(t)e^{-j\omega t} dt}{H(\omega)E_{THz}(\omega) \int I_g(t)e^{-j\omega t} dt} = M(\omega) \quad (43)$$



第五章 結論與未來展望

本章總結實驗現象和結論，結構如下：5.1 - 結論、5.2 - 未來展望。

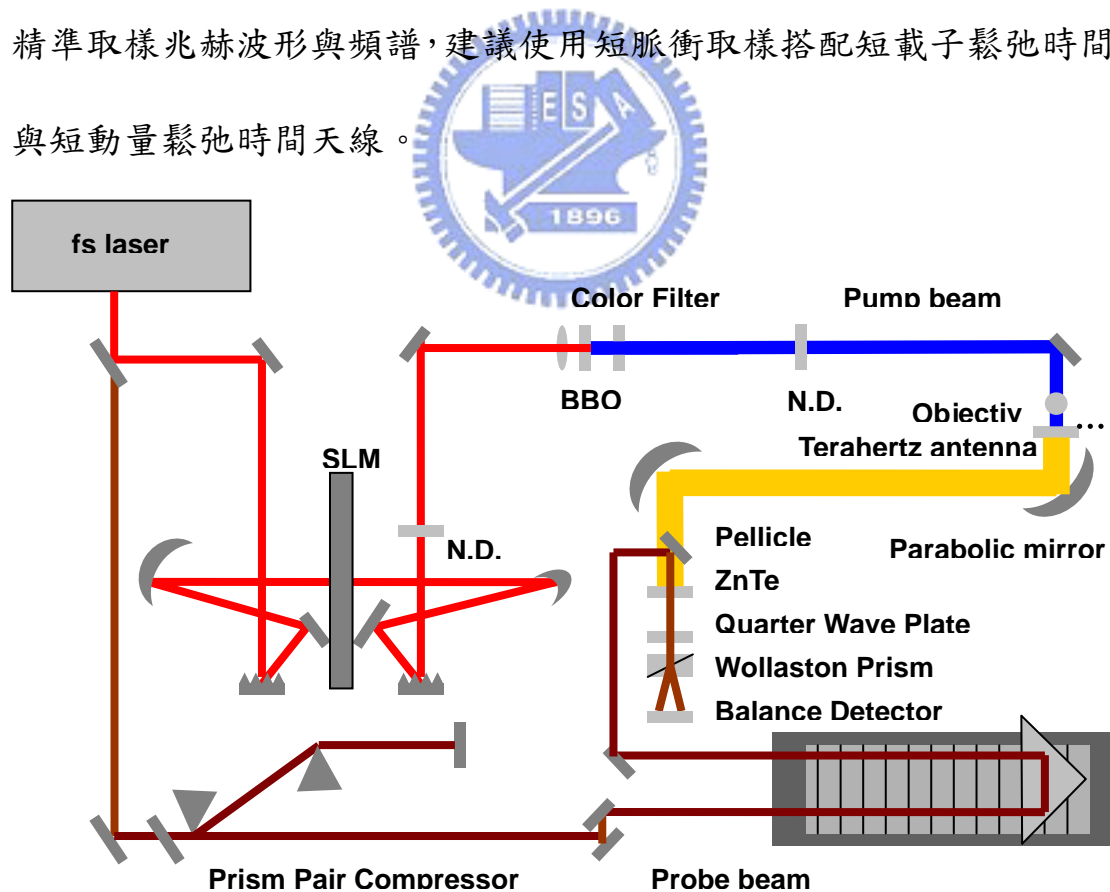
5.1 結論

藉由整合脈衝整形術與泵探技術之啾頻控制泵探實驗，我們觀察到當啾啾量由負啾啾向正啾啾增加，載子鬆弛時間隨之變大，此現象可透過不同頻率光載子動能行為解釋。此外透過結合脈衝整形術與光導天線產生兆赫輻射實驗中，除再次確認入射脈衝啾頻調變對兆赫輻射在啾頻符號對應輻射大小不對稱性與正啾頻入射條件具較佳輻射效果。

另外，我們首度報導光導天線在高激發密度下時域訊號極大值和輻射能量與激發密度異常關係，此原因歸咎於雙光子吸收效應，純單光子吸收作用下，由於激發飽和與天線偏壓深度限制，將使輻射能量飽和。透過雙光子吸收效應，剛開始由於雙光子用兩光子換一自由載子將使輻射能量減少，但當單光子吸收飽和時，價電子仍可透過雙光子吸收躍遷至導帶，天線輻射能量將可持續增加。透過雙光子吸收可突破激發飽和限制，由 Drude-Lorentz 模型知大量自由載子將使區域電場來回震盪，產生高頻兆赫輻射。

實驗中經常利用光導天線取樣兆赫波波形，由取樣理論知，相干函數特性使偵測光電流為扭曲後結果，實驗證明量測兆赫波段材料特性時，此扭曲效應將導致量得材料響應函數隨取樣形狀而改變，為使量測結果精準，建議使用短脈衝取樣搭配短載子鬆弛時間與短動量鬆弛時間之天線。

本論文利用 Drude-Lorentz 模型模擬光導天線輻射和接收兆赫波機制，為產生高能量、高頻寬兆赫光源建議使用短脈衝激發天線並選用長載子鬆弛時間和長動量鬆弛時間材料製作天線，在輻射偵測端為精準取樣兆赫波形與頻譜，建議使用短脈衝取樣搭配短載子鬆弛時間與短動量鬆弛時間天線。



圖五十二 倍頻光源之啾頻控制兆赫輻射時析光譜系統

5.2 未來展望

實驗證明雙光子吸收能階可貢獻至天線輻射，從 Drude-Lorentz 模型知，由於雙光子吸收能階無激發飽和問題，將大幅增加天線輻射能量，並透過區域電場震盪產生高頻輻射，大幅突破目前頻譜極大值位在 $0 \sim 1\text{THz}$ 之限制，實驗架構如圖五十一，使用 800nm 脈衝倍頻至 400nm ，直接用 400nm 脈衝激發光導天線，原因為：(1) 在低溫砷化鎵材料中使用雙光子吸收之效益不如使用 BBO 倍頻晶體產生 400nm 脈衝後直接激發、(2) 倍頻後頻譜寬度增加，脈衝寬度將縮短 $\sqrt{2}$ 倍、(3) 使用 400nm 脈衝激發不用考慮 800nm 能階吸收，並可避開 400nm 和 800nm 產生之兆赫波同調性問題。

實驗常利用兆赫輻射時析光譜系統搭配光導天線取樣兆赫波波形，由取樣理論知，相干函數特性使偵測光電流為扭曲後結果，就算載子鬆弛時間和動量鬆弛時間小至 100fs ，此效應仍舊存在，若要精確量測兆赫波形與頻譜，建議之後使用電光偵測，由於電光偵測無載子鬆弛時間與動量鬆弛時間耦合問題，時間解析度可透過脈衝壓縮提高至最短脈寬，且量測樣品時，由於最短脈衝具左右對稱特性，相干函數可改變為捲積，捲積特性將使取樣函數在材料特性量測中相消，得到精確響應。

參考文獻

- [1] T. M. Maiman, "Stimulated optical radiation in ruby," *Nature* 187, 87 (1959)
- [2] M. A. Duguay and J. W. Hansen, "An ultrafast light gate," *Appl. Phys. Lett.* 15, 192 (1969)
- [3] R. L. Fork, B. I. Greene, and C. V. Shank, "Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking," *Appl. Phys. Lett.* 38, 671 (1981)
- [4] R. L. Fork, C. H. Brito Cruz, P. C. Becker, and C. V. Shank, "Compression of optical pulses six femtoseconds by using cubic phase compensation," *Opt. Lett.* 12, 483 (1987)
- [5] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, "60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire Laser," *Opt. Lett.* 16, 42 (1997)
- [6] D. H. Shutter, G. Steinmeyer, L. Gallmann, N. Matuschek, F. Morier-Genoud, U. Keller, V. Scheuer, G. Angelow, and T. Tschudi, "Semiconductor saturable-absorber mirror assisted Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser producing pulses in the two cycle regime," *Opt. Lett.* 24, 631 (1999)
- [7] J. M. Thorne, T. R. Loree, and G. H. McCall, "Intensity filtration of laser light," *J. Appl. Phys.* 45, 3072 (1974)
- [8] C. E. Thomas and L. D. Siebert, "Pulse shape generator for laser fusion," *Appl. Opt.* 15, 462 (1976)
- [9] J. Desbois, F. Gires, and P. Tournois, "A new approach to picosecond laser pulse analysis shaping and coding," *IEEE J. Quantum Electron.* 9, 213 (1973)
- [10] J. P. Heritage, R. N. Thurston, W. J. Tomlinson, A. M. Weiner, and R. H. Stolen, "Spectral windowing of frequency-modulated optical pulses in a grating compressor," *Appl. Phys. Lett.* 47, 87 (1985)

- [11] J. P. Heritage, A. M. Weiner, and R. N. Thurston, "Picosecond pulse shaping by spectral phase and amplitude manipulation," *Opt. Lett.* 10, 609 (1985)
- [12] A. M. Weiner, J. P. Heritage, and R. N. Thurston, "Synthesis of phase-coherent, picosecond optical square pulses," *Opt. Lett.* 11, 153 (1986)
- [13] A. M. Weiner, J. P. Heritage, and E. M. Kirschner, "High-resolution femtosecond pulse shaping," *J. Opt. Soc. Am. B* 5, 1563 (1988)
- [14] A. M. Weiner, D. E. Leaird, J. S. Patel, and J. R. Wullert, "Programmable femtosecond pulse shaping by use of a multielement liquid-crystal phase modulator," *Opt. Lett.* 15, 326 (1990)
- [15] J. P. Heritage, et al., CLEO, Baltimore, MD (1991)
- [16] C. W. Hillegas, J. X. Tull, D. Goswami, D. Strickland, W. S. Warren, "Femtosecond laser pulse shaping by use of microsecond radio-frequency pulses," *Opt. Lett.* 19, 737 (1994)
- [17] P. Tournois, "Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems," *Opt. Commun.* 140, 245 (1997)
- [18] D. H. Auston, "Picosecond optoelectronic switching and gating in silicon," *Appl. Phys. Lett.* 26, 101 (1975)
- [19] C. H. Lee, "Picosecond optoelectronic switching in GaAs," *Appl. Phys. Lett.* 30, 84 (1977)
- [20] G. Mourou, C. V. Stancampiano, A. Antonetti, and A. Orszag, "Picosecond microwave pulses generated with a subpicosecond laser-driven semiconductor switch," *Appl. Phys. Lett.* 39, 295 (1981)
- [21] P. R. Smith and D. H. Auston, "Subpicosecond photoconducting dipole antennas," *IEEE J. Quantum Electron.* 24, 255 (1988)
- [22] M. V. Exter, Ch. Fattinger, and D. Grischkowsky, "High-brightness terahertz beams characterized with an ultrafast detector," *Appl. Phys. Phys. Lett.* 55, 337 (1989)
- [23] M. V. Exter and D. Grischkowsky, "Characterization of an

optoelectronic terahertz beam system," IEEE. Trans. Microwave Theory Tech. 38, 1684 (1990)

[24] P. R. Smith, D. H. Auston, A. M. Johnson, and W. M. Augustyniak, "Picosecond photoconductivity in radiation-damaged silicon-on-sapphire films," Appl. Phys. Lett. 38, 47 (1981)

[25] F. W. Smith, A. R. Calawa, and C.-L. Chen, "New MBE buffer used to eliminate backgating in GaAs MESFET's," IEEE Electron Device Lett. 9, 77 (1988)

[26] T. Yajima and N. Takeuchi, "Far-infrared difference-frequency generation by picosecond laser pulses," Jpn. J. Appl. Phys. 9, 1361 (1970)

[27] M. Rodwell, D. M. Bloom, and B. A. Auld, "Nonlinear transmission line for picosecond pulse compression and broadband phase modulation," Electron. Lett. 23, 109 (1987)

[28] J. T. Darrow, B. B. Hu, X.-C. Zhang, and D. H. Auston, "Subpicosecond electromagnetic pulses from large-aperture photoconducting antennas," Opt. Lett. 15, 323 (1990)

[29] X.-C. Zhang, B. B. Hu, J. T. Darrow, and D. H. Auston, "Generation of femtosecond electromagnetic pulses from semiconductor surfaces," Appl. Phys. Lett. 56, 1011 (1990)

[30] K. Leo, J. Shah, E. O. Gobet, T. C. Damen, S. Schmitt-Rink, W. Schafer, and K. Kohler, "Coherent oscillations of a wave packet in a semiconductor double-quantum-well structure," Phys. Rev. Lett. 66, 201 (1991)

[31] E. R. Brown, F. W. Smith, and K. A. McIntosh, "Coherent millimeter-wave generation by heterodyne conversion in low-temperature-grown GaAs photoconductors," J. Appl. Phys. 73, 1480 (1993)

[32] T. Dekorsy, H. Auer, C. Waschke, H. G. Roskos, H. Kurz, V. Wagner, and P. Grosse, "Emission of submillimeter electromagnetic waves by coherent phonons," Phys. Rev. Lett. 74, 738 (1995)

[33] M. Hangyo, S. Tomozawa, Y. Murakami, M. Tonouchi, M. Tani, Z. Wang, K. Sakai, and S. Nakashima, "Terahertz radiation from

superconducting YBa₂Cu₃O₇ thin films excited by femtosecond optical pulses,” Appl. Phys. Lett. 69, 2122 (1996)

[34] R. Kersting, K. Unterrainer, G. Strasser, H. F. Kauffmann, and E. Gornik, “Few-cycle THz emission from cold plasma oscillations,” Phys. Rev. Lett. 79, 3038 (1997)

[35] M. Tani, R. Fukasawa, H. Abe, S. Matsuura, K. Sakai, and S. Nakashima, “Terahertz radiation from coherent phonons excited in semiconductors,” J. Appl. Phys. 83, 2473 (1998)

[36] M. Nakajima, K. Uchida, M. Tani, and M. Hangyo, “Strong enhancement of terahertz radiation from semiconductor surfaces using MgO hemispherical lens coupler,” Appl. Phys. Lett. 85, 191 (2004)

[37] Y. Liu, S.-G. Park, and A. M. Weiner, “Enhancement of narrow-band terahertz radiation from photoconducting antennas by optical pulse shaping,” Opt. Lett. 21, 1962 (1996)

[38] 莊沁融, “飛秒雷射脈衝形變技術與其兆赫輻射增強之應用研究”, 交通大學光電工程研究所碩士論文 (1995)

[39] T.-H. Wu, C.-R. Chung, C.-K. Lee, and C.-L. Pan, “Enhancement of terahertz radiation by modulation of carrier dynamics with optical pulses in photoconductive antennas” C-FR-V2-8 OPT 2005

[40] P. U. Jepsen, R. H. Jacobsen, and S. R. Keiding, “Generation and detection of terahertz pulses from biased semiconductor antennas,” J. Opt. Soc. Am. B 13, 2424 (1996)

[41] Z. Piao, M. Tani, and K. Sakai, “Carrier dynamics and terahertz radiation in photoconductive antennas,” Jpn. J. Appl. Phys. 39, 96 (2000)

[42] L. Duvillaret, F. Garet, J.-F. Roux, and J.-L. Coutaz, “Analytical modeling and optimization of terahertz time-domain spectroscopy experiments using photoswitches as antennas,” IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 7, 615 (2001)

[43] S.-G. Park and M. R. Melloch, “Analysis of terahertz waveforms

measured by photoconductive and electrooptic sampling,” IEEE. J. Quantum Electron. 35, 810 (1999)

[44] T. Hattori, K. Tukamoto, and H. Nakatsuka, “Time-resolved study of intense terahertz pulses generated by a large-aperture photoconductive antenna,” Jpn. J. Appl. Phys. 40, 4907 (2001)

[45] P. C. Upadhyaya, W. Fan, A. Burnett, J. Cunningham, A. G. Davies, Edmund. H. Linfield, J. Lloyd-Hughes, E. Castro-Camus, M. B. Johnston, and H. Beere, “Excitation-density-dependent generation of broadband terahertz radiation in an asymmetrically excited photoconductive antenna,” Opt. Lett. 32, 2297 (2007)

[46] M. C. Chen, J. Y. Huang, O. Yang, C. L. Pan, and J.-I. Chyi, “Freezing phase scheme for fast adaptive control and its application to characterization of femtosecond coherent optical pulses reflected from semiconductor saturable absorber mirror,” J. Opt. Soc. Am. B 22,, 1134 (2005)

[47] M. Maier, W. Kaiser, and J. A. Giordmaine, “Intense light bursts in the stimulated raman effect,” Phys. Rev. Lett. 17, 1275 (1966)

[48] J. A. Giordmaine, P. M. Rentzepis, S. L. Shapiro, and K. W. Wecht, “Two-photon excitation of fluorescence by picosecond light pulses,” Appl. Phys. Lett. 11, 216 (1967)

[49] T. Mortani, T. Shimano, and S. Mitsui, “Growth temperature dependence in molecular beam epitaxy of gallium arsenide,” J. Cryst. Growth 45, 302 (1978)

[50] S. Gupta, J. F. Whitaker, and G. A. Mourou, “Ultrafast carrier dynamics in III-V semiconductors grown by molecular-beam epitaxy at very low substrate temperatures,” IEEE J. Quantum Electron. 28, 2464 (1992)

[51] M. R. Melloch, N. Otsuka, J. M. Woodall, A. C. Warren, and J. L. Freeouf, “Formation of arsenic precipitates in GaAs buffer layers grown by molecular beam epitaxy at low substrate temperature” Appl. Phys. Lett. 57, 1531 (1990)

[52] S. D. Benjamin, H. S. Loka, A. Othonos, and P. W. E. Smith, “Ultrafast dynamics of nonlinear absorption in

- low-temperature-grown GaAs,” Appl. Phys. Lett. 68, 2544 (1996)
- [53] P. W. E. Smith, S. D. Benjamin, and H. S. Loka, “Tailoring of trap-related carrier dynamics in low-temperature-grown GaAs,” Appl. Phys. Lett. 71, 1156 (1997)
- [54] H. S. Loka, S. D. Benjamin, and P. W. E. Smith, “Optical characterization of low-temperature-grown GaAs for ultrafast all-optical switching devices,” IEEE. J. Quantum Electron. 34, 1426 (1998)
- [55] H. S. Loka, S. D. Benjamin, and P. W. E. Smith, “Refractive index and absorption changes in low-temperature-grown GaAs,” Opt. Commun. 155, 206 (1998)
- [56] J.-S. Yu, S.-F. Horng, and C.-C. Chi, “Well-above bandgap transient photorefectance characterization of low-temperature-grown GaAs,” Jpn. J. Appl. Phys. 37, 554 (1998)
- [57] S.-F. Horng, S.-H. Lu, J.-S. Yu, T.-R. Tsai, and C.-C. Chi, “Comparison of optical pump-probe characterization of low-temperature-grown GaAs at well-above-bandgap and near-bandedge wavelengths,” Opt. Quantum Electron. 32, 573 (2000)
- [58] X. Q. Zhou, H. M. Van Driel, W. W. Ruhle, and K. Ploog, “Direct observation of a reduced cooling rate of hot carriers in the presence of nonequilibrium LO phonons in GaAs:As,” Phys. Rev. B 64, 16148 (1992)
- [59] Y. C. Shen, P. C. Upadhyaya, H. E. Beere, E. H. Linfield, A. G. Davies, I. S. Gregory, C. Backer, W. R. Tribe, and M. J. Evans, “Generation and detection of ultrabroadband terahertz radiation using photoconductive emitters and receivers,” Appl. Phys. Lett 85, 164 (2004)
- [60] Y.-P. Yang, X.-L. Xu, W. Yan, L. Wang, “Characteristics of THz emission from GaAs crystal excited by 400nm and 800nm optical pulses,” Chin. Phys. Lett. 22, 2123 (2005)