

行政院國家科學委員會補助專題研究計畫

成果報告
期中進度報告

利用硒化鎵晶體之差頻效應產生兆赫光波及在氧化鋅內聲子
頻譜之研究

計畫類別： 個別型計畫 整合型計畫

計畫編號：NSC 92 - 2112 - M - 009 - 029 -

執行期間：92 年 08 月 01 日至 93 年 07 月 31 日

計畫主持人：張振雄

共同主持人：

計畫參與人員：

成果報告類型(依經費核定清單規定繳交)： 精簡報告 完整報告

本成果報告包括以下應繳交之附件：

赴國外出差或研習心得報告一份

赴大陸地區出差或研習心得報告一份

出席國際學術會議心得報告及發表之論文各一份

國際合作研究計畫國外研究報告書一份

處理方式：除產學合作研究計畫、提升產業技術及人才培育研究計畫、
列管計畫及下列情形者外，得立即公開查詢

涉及專利或其他智慧財產權， 一年 二年後可公開查詢

執行單位：國立交通大學光電工程研究所

中 華 民 國 93 年 10 月 30 日

中文摘要

關鍵字：硒化鎵、兆赫光波、差頻效應

本計畫是利用連續可調波長的摻鈦藍寶石雷射，其波長可調範圍為 0.9-1.0 μm ，另一雷射則是使用了波長為 1.064 μm 的 Nd:YVO₄ 雷射來進行差頻效應實驗。目的是用以產生中、遠紅外甚至到兆赫光波能連續可調且具有同調性的光源。在計畫進行當中，我們嘗試改進模態耦合匹配問題及雷射光功率提升問題。結果發現差頻光轉換效率仍會受到雷射線寬的影響，這是由於多的 cavity mode 會均分了輸出的雷射功率，進而導致降低非線性光學的轉換效率。目前，差頻效應實驗系統改採皮秒脈衝式雷射光源來產生同調性的差頻光源，此部分的實驗仍然繼續進行中。

Abstract

Keywords: GaSe, Terahertz wave, different-frequency generation

In this project, different-frequency generation was proposed using the cw Nd:YVO₄ laser and tunable cw Ti:Sapphire laser as pumping source and co-linearly frequency mixed in a GaSe crystal to generate the Terahertz radiation. The reason is due to that GaSe crystal has the lowest absorption coefficients in the THz wavelength region. In order to enhance the nonlinear conversion efficiency, by increasing the power of pumping source and the problem of mode matching are considered. But, the low conversion efficiency was still restricted by too many cavity modes existing in the wide linewidth of our lasers. Therefore, the picosecond pulsed Nd:YAG laser and BBO-OPO tunable laser were considered as pumping source to generate the Terahertz radiation. Until now, this experiment is still in progress.

一、前言

近年來對於兆赫光波的產生一直是許多研究團體的主要發展課題。由於其波段位於微波和紅外光之間，物質在此頻率範圍內的光譜(包括發射、反射和透射)包含有豐富的物理和化學資訊，如凝態物質的聲子頻率、大分子(包括蛋白質等生物分子)的振動光譜均在兆赫波段有很多特徵峰，凝態物質和液體中的載流子對兆赫光波也有非常靈敏的回應。但是在產生兆赫光波方面，不管是由電子振盪元件如電子調速管(klystron)、行波管(Traveling wave tube, TWT)、耿氏二極體(Gunn diode)及雪崩暫態二極體(Impact avalanche transistors, IMPATT diode)，在頻率高達 100GHz 以上時，已很難加以發射與偵測[1]。目前產生兆赫光波的方法大多是利用超短脈衝雷射光入射到半導體材料表面，藉由光導模式或者光整流模式，激發出約幾百 GHz 到幾個 THz 頻寬的兆赫光波。除此之外，在兆赫光波技術發展上另一個引人注意的是在 2002 年美國 Lehigh university 之 Wei Shi 等研究群[2]，成功地利用硒化鎵非線性光學晶體作為頻率轉換器產生 THz。他們先將脈衝 Nd:YAG 雷射光波激發在 OPO 系統中之 $\text{-BaB}_2\text{O}_4$ 晶體，取出閒頻光波(Idler wave)頻率再與脈衝 Nd:YAG 雷射光波在 GaSe 晶體內產生了可調範圍為 0.18-5.27THz 且具同調性的脈衝式兆赫光波。Wei Shi 等研究群之所以會選擇硒化鎵晶體的原因是由於這顆晶體特性在兆赫光波範圍內的吸收係數遠較於一般現今常用的非線性光學晶體如 LiNbO_3 、 LiTaO_3 、 ZnGeP_2 、DAST、CdSe、GaP 及 GaAs 等來的低，因為非線性光學轉換效率是被有效吸收長度所決定，因此在兆赫頻段越低的吸收係數才會有越高的轉換效率。另一方面，由於硒化鎵晶體本身具有很大的雙折射係數，這才能使得在連續可調兆赫光波範圍內的相位匹配條件都能滿足。除此之外，Wei Shi 等研究群也在 Applied Physics Letters 期刊上發表了利用硒化鎵晶體成功地將雷射光源拓展至 $2.7\text{-}28.7\ \mu\text{m}$ [3]。不管是從近紅外到遠紅外光波的光波轉換都能被硒化鎵晶體實現，這足以證明了硒化鎵晶體在作為頻率轉換器上具有很大的潛力。

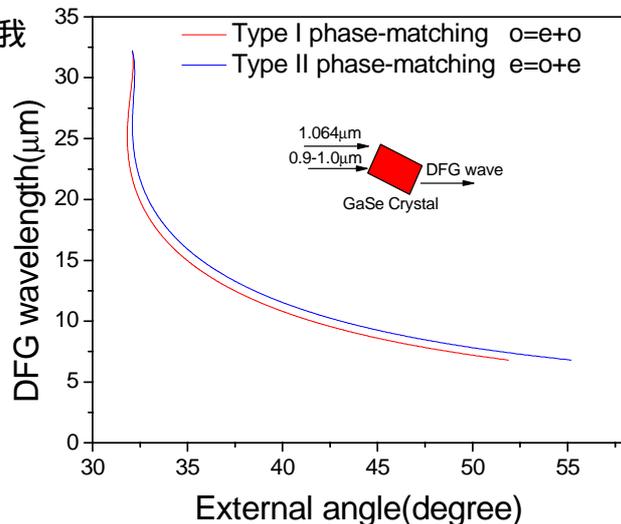
在本計畫中，為了要產生中、遠紅外甚至到兆赫光波能連續可調且具有同調性的光源，我們利用了非線性光學中的差頻效應來實踐，其中所考慮的非線性晶體是具有相當大二階非線性係數的硒化鎵晶體，此晶體之選擇一方面是由於在國外已有研究群證實，硒化鎵晶體能達到兆赫光波的頻率轉換，另一方面對於硒化鎵晶體的生長，我們實驗室也累積了幾年的經驗，關於硒化鎵晶體的成長摻雜以及光學、電性的特性分析我們也有數篇論文在國際期刊上發表[4,5]。因此計畫利用硒化鎵晶體來產生具同調性且連續可調波長的中、遠紅外連續光源是接下來計畫努力的目標。

二、研究方法

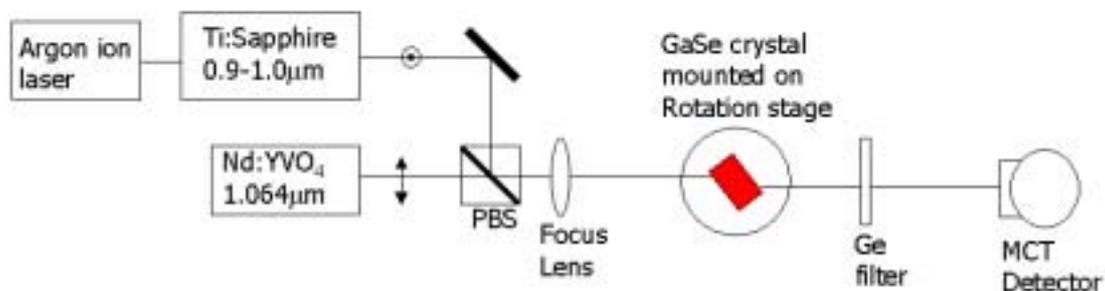
首先，在此計畫實驗中我們使用了連續可調波長的摻鈦藍寶石雷射，其波長可調範圍為 $0.9\text{-}1.0\ \mu\text{m}$ (Coherent 890)，另一雷射則是考慮使用了波長為 $1.064\ \mu\text{m}$ 的 Nd:YVO₄ 雷射。在這兩個波長範圍中硒化鎵晶體裡均能滿足 Type I &

Type II 的共線相位匹配條件，根據能量及動量守恆的理論計算，所獲得的外部相位匹配角度約在 35-55 度之間，其所相對應的差頻光波波長為 5-20 μm 左右，計算結果如圖一所示。其中所需要的尋常光和非尋常光所需的色散關係式，我們是參考在 1995 年 Vodopyanov 等研究群 [6] 所發表關於硒化鎵晶體色散關係的修正式。

在實驗中所使用的硒化鎵晶體是由我們實驗室利用垂直式布氏長晶法所自行成長，晶體長度約為 0.5-1.5cm，此晶體在差頻實驗中被置放在精密旋轉台上，以便能達到正確的相位匹配角度。最後在偵測部分，我們使用的是 MCT 偵測器再加上鎖相放大器來擷取所產生差頻光訊號。整體的實驗架構示意圖如圖二所示。



圖一 理論計算 Type I & Type II 之相位匹配角



圖二 實驗架構示意圖

雖然在 Type I 和 Type II 的相位匹配條件均能被滿足，但在相同的差頻光波波長下，Type I 所對應的相位匹配角度會比 Type II 來的小，因此在接下來的實驗中，選定 Type I 為實驗的相位匹配條件。由於利用的是 Type I 的相位匹配條件，因此將 p 偏振的摻鈦藍寶石雷射與 s 偏振的 Nd:YVO₄ 雷射，經過 PBS 後利用 15cm 的透鏡，共線的聚焦至硒化鎵晶體中，此時這兩束雷射光在晶體中的光腰大小分別約為 200 μm 和 250 μm ，雷射功率均約為 150mW。將硒化鎵晶體放置在相位匹配角度上，結果並不如預期能偵測到差頻光訊號。我們猜測無法測到差頻光訊號的原因可能由於轉換效率偏低所致，因此接下來我們嘗試以下幾種方法來提高非線性光學的轉換效率。

三、結果討論

(一) 模態匹配的問題

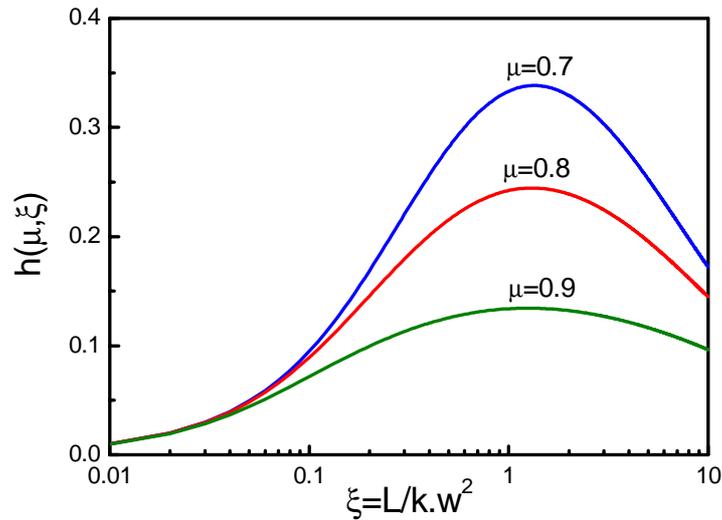
在實驗過程中，由於兩道不同波長的雷射光經 PBS 聚焦後之焦平面會有所不同，因此為了增加兩雷射光波在硒化鎵晶體中耦合的轉換效應，我們在兩道雷射光進入 PBS 前，分別放置不同焦距之透鏡分別為 10cm 和 15cm，使得兩雷射光束經 PBS 後的焦點能位在同一平面上。在此條件下，所獲得的兩雷射光腰大小分別為 170 μm 和 50 μm 。由於在非線性光學轉換中，雷射光束的模態耦合匹配是重要的課題，因此根據非線性光學中差頻效應的理論推導，可以獲得非線性光學轉換效率和兩雷射光聚焦後的光腰大小之間的關係 [7]，其理論關係式如下：

$$P_i = \frac{(16\pi\omega_i)^2 (d_{eff})^2}{c^3 n_i n_s n_p} \frac{h(\mu, \xi, \alpha)}{(k_s^{-1} + k_p^{-1})} LP_p P_s \exp(-\frac{\alpha L}{2}) \quad (1)$$

其中 $\mu = k_p/k_s$ ； $\xi = L/b$ ； $b = k_p W_p = k_s W_s$ ； $h(\mu, \xi, \alpha)$ 函數為聚焦函數，是由晶體長度 (L)、雷射光腰大小以及晶體的吸收係數來決定。其表示式如下：

$$h(\mu, \xi, \alpha) = \frac{1}{4\xi} \int_{-\xi}^{\xi} d\tau \int_{-\xi}^{\xi} d\tau' \frac{\exp[\frac{b\alpha}{4}(\tau - \tau')]}{1 - \frac{j}{2}(\frac{1+\mu}{1-\mu} + \frac{1-\mu}{1+\mu})(\tau - \tau') + \tau\tau'} \quad (2)$$

根據上述理論，我們嘗試將 $h(\mu, \xi, \alpha)$ 函數與 ξ 關係作圖，結果如圖三所示。結果發現在不同 μ 值條件下， $h(\mu, \xi, \alpha)$ 的極大值均發生在 $\xi \sim 1.3$ 附近。再從 ξ 與 b 的關係中可以推得雷射光腰約在 46 μm 可以獲得最大的轉換效率。



圖三 $h(\mu, \xi, \alpha)$ 函數與 ξ 關係圖

在實驗中，由於摻鈦藍寶石雷射光束發散角較小，很難將其光腰縮小至 50 μm ，因此利用放大倍率為 2 的望遠鏡透鏡組來作為 mode coupled lenses，目的是將摻鈦藍寶石雷射光束先行擴束後在聚焦，以便能獲得較小的光腰直徑，進而提高差頻光的轉換效率。在實驗結果中，確實能將摻鈦藍寶石雷射光腰縮小至約 60 μm 左右，但在檢測差頻光的過程中，卻仍然無法偵測到訊號。

(二) 雷射光功率問題

從公式一可得知，產生差頻光光功率和入射兩雷射光光功率成線性正比的關係，因此嘗試著提高摻鈦藍寶石雷射與 Nd:YVO₄ 雷射光功率。在 Nd:YVO₄ 雷射部分，由於為四能階雷射系統，此雷射的運作可以用速率方程式近似表示：

$$\frac{dN(x, y, z)}{dt} = G(x, y, z) - \sigma_c \frac{\rho(x, y, z)}{h\nu} N(x, y, z)$$

$$\frac{dq}{dt} = \sigma_c \int_a \frac{\rho(x, y, z)}{h\nu} N(x, y, z) dV - \frac{q}{\tau_c}$$

經由進一步的推導可獲得下式：

$$P_{out} = \frac{TJ_1^2}{2\gamma J_2} \eta_p [P_{in} - P_{th}] = \eta_s [P_{in} - P_{th}] ;$$

$$P_{th} = \frac{A_e \gamma}{J_1 \eta_p} I_{sat}$$

從上式可以得知 P_{th} 正比腔內模的有效面積 A_e 。因此從理論推導可得知，減少所使用的輸出耦合透鏡半徑和縮短共振腔距離，則能有效的降低 Nd:YVO₄ 雷射所需的臨界功率 P_{th} 進而增加其斜率效率 η_s 。所以我們嘗試改變 Nd:YVO₄ 雷射中的輸出耦合透鏡半徑和共振腔長，結果明顯的將輸出功率增加至 600mW，雷射功率獲得明顯的改善。

在摻鈦藍寶石雷射部分，我們嘗試將激發摻鈦藍寶石的氫離子雷射的輸出光圈放大用以提高激發光功率，但相對的氫離子雷射輸出光模態也會變差，當然間接會影響到摻鈦藍寶石的輸出模態，不過摻鈦藍寶石的輸出功率則可以提高至 450mW。

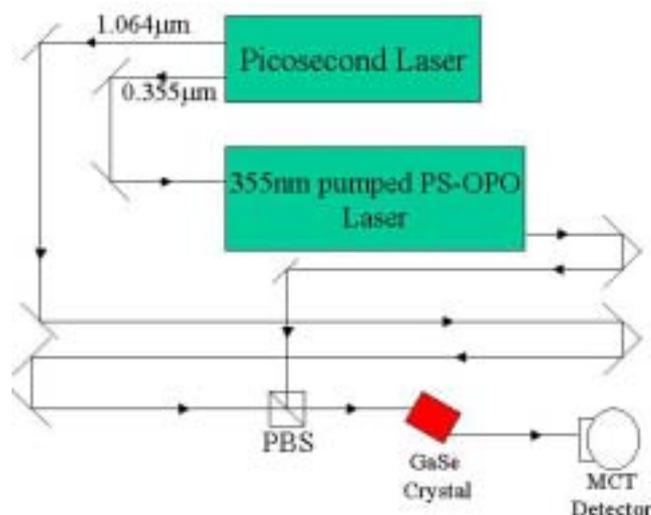
最後也將提高功率後的兩束雷射光共線的入射硒化鎵晶體內，雖然兩束雷射光功率相加約為 1W，但結果仍然無法能偵測到差頻光訊號。

(三) 雷射線寬問題

經過了模態匹配的修正和雷射光功率提升改進，仍無法有效的偵測到差頻光訊號，因此我們重新檢測兩雷射光束的光譜特性，結果發現這兩雷射光束的線寬約為 5-7Å，相對應的頻寬 (~1500GHz) 與目前其他研究團體 [8-10] 所使用的雷射的頻寬 150MHz 寬出許多。因此猜測在我們所使用的雷射光源條件下，存在了許多的 cavity mode 均分了輸出的雷射功率，相對於每個 mode 所對應的光強度就明顯的減弱了很多，進而貢獻在非線性光學轉換上就明顯的不足。所以關鍵性的

問題是在於如何將參與差頻效應的這兩束雷射光線寬壓窄，以進而獲得單模且功率在 100mW 以上的雷射光束。由於我們所使用的摻鈦藍寶石雷射(型號為 coherent 890)為套裝的固態雷射，整個共振腔架構已經無法變更，因此在產生連續光波之中、遠紅外光源的實驗已很難再繼續進行。

計畫執行至今，對於產生連續光波之中、遠紅外甚至到兆赫光波能連續可調且具有同調性的光源實驗面臨了許多問題與挑戰。為了更有效的來產生此波段的雷射光源，我們進而與光電所潘犀靈、黃中堯教授合作，計畫利用波長為 $1.064\mu\text{m}$ 皮秒脈衝式雷射和其三倍頻 pumped BBO-OPO 雷射之可調波長 idler wave 來進行差頻效應實驗，進而產生兆赫光波雷射光源，其實驗架構如圖四所示。此部分實驗仍然持續進行中



圖四 皮秒差頻效應實驗架構示意圖

四、參考文獻：

- 1) B.D. Guenther: SPIE 2145 (1994) 120.
- 2) W. Shi, Y.J. Ding, N. Fernelius, and K. Vodopyanov: Optics Letters **27** (2002) 1454.
- 3) W. Shi, Y.J. Ding, X. Mu, and N. Fernelius: Applied Physics Letters **80** (2002) 3889.
- 4) Y.K. Hsu, C.S. Chang, and W.F. Hsieh: Japanese Journal of Applied Physics **42** (2003) 4222.
- 5) Y.K. Hsu, W.C. Huang, and C.S. Chang: Japanese Journal of Applied Physics **96** (2004) 1563.
- 6) K.L. Vodopyanov and L.A. Kulevskii: Optics Communications **118** (1995) 375.
- 7) T.-B.-Chu, and M. Broyer: Journal of Physique **45** (1985) 1599.
- 8) R.S. Putnam and D.G. Lancater: Applied Optics **38** (1999) 1513.
- 9) W.C. Eckhoff, R.S. Putnam, S. Wang, R.F. Curl, and F.K. Tittel: Applied Physics B **63** (1996) 437.
- 10) W. Chen, G. Mouret, and D. Boucher: Applied Physics B **67** (1998) 375.

計畫成果自評

本計畫除了探討硒化鎵晶體應用在產生兆赫光波實驗中所面臨的實驗問題外，Er:GaSe 之電性量測包含摻鋁造成電洞濃度變化、電洞載子遷移率變化，以及深層能階的量測，這部分的工作均已完成，且已刊登於國外應用物理期刊中(Journal of Applied Physics)。

除了 GaSe 材料，矽鍺奈米微粒和氧化鋅奈米線生長及量測也大致完成。在矽鍺奈米微粒的研究部分，利用簡單便宜的電化學製程可製備出奈米矽微晶於多孔矽內，利用外加電流量及時間控制其深度及孔洞大小。經過多孔矽的電化學蝕刻後，會產生奈米孔洞，再利用 RTA 製程製備出矽的奈米微粒。另外使用多孔矽配合電鍍技術，產生鍺的奈米微晶於奈米孔洞內。並利用 SEM, TEM, AFM, XRD 觀察奈米微粒之結晶特性，以及藉由 MOS 元件之 C-V 的電滯曲線和 I-V 電流曲線分析載子傳輸行為。最後使用 PL, Raman 的光學頻譜的特性探討奈米晶體所產生的光學特徵。奈米微粒的尺寸也可由電化學蝕刻所用的電流量及時間控制；在氧化鋅奈米線生長部分，製作的有兩種方式，一種是用基板為無催化劑的多孔矽。另外一種是用矽基板經過半導體製程製備的圖形(pattern-growth)再加上以金作催化劑，製備出晶體結構的奈米線。同樣以 SEM, TEM, XRD 觀察其材料結晶特性，加上 PL 及 Raman 的頻譜來分析光學性質。此部分的成果已投國際期刊，目前正在審查中。

總之，我們今年在產生兆赫光波的研究中，面臨了實驗上雷射線寬的限制也嘗試的提升轉換效率的可能性，此部分的研究也繼續進行中。另外在 Er:GaSe 電性研究及氧化鋅奈米線的生長也已發表在國際期刊中。